

博士論文

ケナフ繊維／ポリスチレン複合材料の
成形条件に関する材料科学的考察

**Material Scientific Study on the Processing Conditions
for Kenaf Fiber / Polystyrene Composites**

2013 年 3 月

拖 曉航

群馬大学大学院 工学研究科
先端生産システム工学領域

目次

第一章 序論

1-1 材料の歴史	1
1-2 様々な植物繊維強化複合材料	2
1-3 天然繊維強化複合材料の製造技術	8
1-4 本研究の目的	12
1-5 本研究の概要	14
参考文献	15

第二章 ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料の射出成形条件に対する統計分析

2-1 緒言	27
2-2 ケナフ繊維／ポリスチレン複合材料の製造	
2-2-1 原料組成	28
2-2-2 製造プロセスと装置	29
2-3 射出成形条件の設定	29
2-4 実験計画法の応用	43
2-5 引張試験と測定結果	44
2-6 直交表データの分散分析	45
2-7 まとめ	62
参考文献	63

第三章 ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料射出成形品における繊維の配向状態

3-1 緒言	65
3-2 ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料の製造	66
3-3 バレル温度および射出圧力が材料の成形性に及ぼす影響	69
3-4 繊維配向の定義	73
3-5 ダンベルにおける繊維配向方向の表記	75

3-6 ダンベルの5ヶ所における繊維配向	75
3-7 引張破断箇所における繊維配向	76
3-8 まとめ	84
参考文献	85

第四章 ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料の成形過程で繊維の損傷

4-1 緒言	89
4-2 実験	
4-2-1原料と製造条件	92
4-2-2回収繊維の分離	93
4-2-3回収繊維の熱重量分析	93
4-2-4回収繊維の寸法測定	93
4-3 結果および考察	
4-3-1押出工程における繊維の熱損傷	98
4-3-2押出回数による繊維の熱損傷	99
4-3-3成形過程における繊維の寸法変化	100
4-3-4回転速度が繊維の寸法変化に及ぼす影響	101
4-4 まとめ	107
参考文献	109

第五章 結論

関連論文	116
------	-----

付録A ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料の射出成形性に及ぼす発泡剤の添加効果	117
--	-----

謝辞	124
----	-----

第一章 序論

1-1 材料の歴史

材料は人間の生活と生産労働に不可欠なものであり，また人類の進化に伴って，発展してきた．石器時代，土器時代，青銅器時代を経て，石，セラミックス，金属と材料が変遷した[1]．我々は，生活や生産のニーズを満たすために，新材料を発見し，改善し続けている．近代においては，鋼の誕生によって材料は著しい発展をとげた．鋼材は，電車・飛行機・高層ビルなどの建築に使われ，我々の生活空間を拡大し，劇的な変化を引き起こした．

1907 年，レオ・ベークランドがフェノールとホルムアルデヒドから合成したベークライトという樹脂を発明後，この人工合成樹脂によって，ビリヤードのボールは象牙を用いずに製造できるようになった．それ以来，合成樹脂が次第に広く利用されていくことになる．合成樹脂(プラスチック，合成ゴム，合成繊維)は金属の代わりに，現代社会でますます重要な材料となっている．

単一な材料が複雑な要求を満足できない場合には，人々は多種の材料を組み合わせ，相乗効果を通じて全体的なパフォーマンスを原材料より優れたものとしようとする要求を満たす．一種類の材料をマトリックスとし，別の材料を強化体とする材料を複合材料という．ガラス繊維強化プラスチックから炭素繊維強化プラスチックまで，複合材料は広範に開発され応用されてきた．

材料は人々が世界を変える物質ツールとして急速に発展してい

る。環境に優しい材料開発を促進するための継続的な努力は、私たちの世界をより豊かにする。

四種類の固体材料の発展と重要性(Fig.1-1)を見ると、複合材料は 20 世紀半ばから次第に重要性を増している[1]。その中で、天然繊維強化複合材料(Natural Fiber Reinforcement Plastics, NFRP)は今後、環境保護の観点から新たな役割を果たしていくものと期待される。

1-2 様々な植物繊維強化複合材料

現在、原料資源の不足、環境保護概念の強まり、低コスト化の要望によりプラスチックのリサイクルが重要となっている。そのため、植物繊維とプラスチック材料から成る複合材料への関心が高まっている。なかでも、靱皮繊維は力学物性に優れるため、特に注目されている。

植物繊維は靱皮繊維(ジュート・亜麻・ヘンプ・ラミーとケナフ)、葉繊維(マニラアサ・サイザルアサ・パイナップル)、種子繊維(ココヤシ皮の繊維・綿花・カポック)、葦繊維(コムギ・トウモロコシ・ライス)、木質繊維等に分けられる(Fig.1-2)。

各繊維の機械的性質(Table 1-1)から見ると、靱皮繊維は高い引張強度と弾性率を有するため、複合材料の強化体に適している。経済的に見ても靱皮繊維の商業性は小さくない(Table 1-2)。

靱皮繊維強化複合材料に関する研究の進捗状況は以下のとおりである：

ジュート(Jute)は、約 100 種類の含むモロヘイヤ植物から生産さ

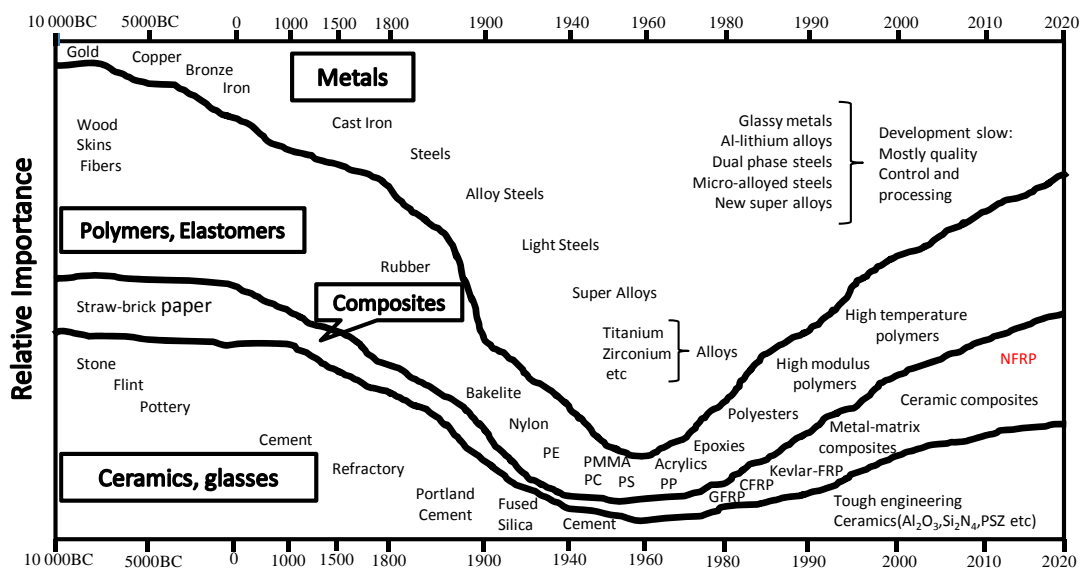


Fig.1-1 材料に対する重要性の変遷^[1]

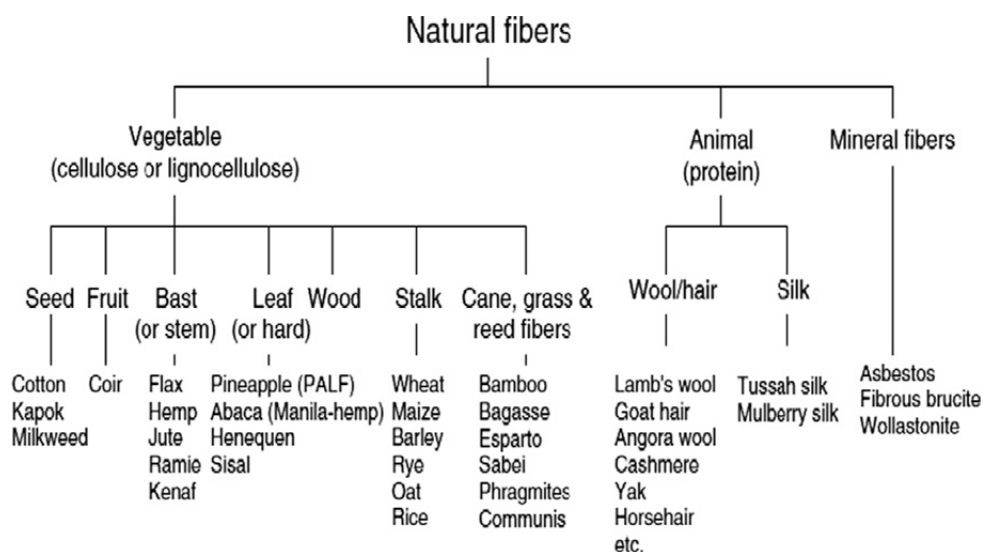


Fig.1-2 天然繊維の分類^[2]

Table 1-1 天然繊維の物性^[2-4]

Fiber	Tensile strength (MPa)	Young's modulus (GPa)	Elongation at break (%)	Density (g/cm ³)
Abaca	400	12	3-10	1.5
Bagasse	290	17	-	1.25
Bamboo	140-230	11-17	-	0.6-1.1
Flax	345-1035	27.6	2.7-3.2	1.5
Hemp	690	70	1.6	1.48
Jute	393-773	26.5	1.5-1.8	1.3
Kenaf	930	53	1.6	1.45
Sisal	511-635	9.4-22	2.0-2.5	1.5
Ramie	560	24.5	2.5	1.5
Oil palm	248	3.2	25	0.7-1.55
Pineapple	400-627	1.44	14.5	0.8-1.6
Coir	175	4-6	30	1.2
Curaua	500-1150	11.8	3.7-4.3	1.4
E-glass	2400	73	3	2.55
S-glass	4570	86	2.8	2.5

Table 1-2 商業用の天然繊維資源^[5]

Fiber source	World production (10 ³ ton)
Bamboo	30,000
Jute	2,300
Kenaf	970
Flax	830
Sisal	378
Hemp	214
Coir	100
Ramie	100
Abaca	70
Sugar cane bagasse	75,000
Grass	700

れている。これは最も安価な天然靱皮繊維の一つであり、現在最高の生産量を持つ繊維である。バングラデシュ、インドと中国はジュートの成育のための最適条件を備えている。

ハイブリダイゼーション[6]がジュート・綿強化ポリエステル複合材料の引張特性に及ぼす影響が、繊維含有率、繊維配向性との関係で調べられた。ジュートのアライメント方向に沿った引張特性は、繊維含量が50%より少ない時着実に増加し、50%より多い時減少する傾向を示すことが観察された。ジュートアライメントと平行で、繊維含有率が50%である複合材料の引張強さは、純粋なポリエステル樹脂に比べ約220%高くなった。

ジュート繊維強化PPの複合材料に対して、マトリックス処理の効果[7]、ガンマ放射線の影響[8]、クリープおよび動的力学的挙動に関する界面接着の効果[9]、シランカップリング剤[10,11]、及び天然ゴムの効果[12] が調査された。

ジュート繊維強化ポリエステル樹脂複合材料に対しては吸水率と誘電挙動[13]、弾性特性、切り欠き強度および破壊基準[14]、衝撃損傷特性[15]、劣化および熱挙動[16]、シラン処理効果[17]などが検討された。

これらの他に様々なジュート/プラスチック複合材料について、熱安定性、結晶性、繊維配向、トランスエステル化、アルキル化、劣化、耐久性、および自動車部品の摩擦と摩耗挙動などが検討された[18-25]。

亜麻(Flax)も靱皮繊維の一種である。温帯地域で栽培され、世界最古の繊維作物の一つである。亜麻靱皮繊維は、最も頻繁に、より付加価値の高い繊維製品の分野で使用されている。現在では、さらに幅広い複合的な領域で使われるようになっている。

亜麻繊維茎部の引張機械特性が、その直径と部位に応じて推定されている[26]。単一方向亜麻繊維/エポキシマトリックス複合材料の機械的特性が、様々な繊維含有量に対して研究され、複合材料の特性は、単繊維の特性から予想されるものより低くなることが報告されている。

亜麻繊維/ポリプロピレン複合材料に関しては様々な研究が行われている。マトリックスをPLAにした場合との比較[27]、加工条件の影響[28]、加工方法の影響など、多様な観点から検討が行われている[29]。Buttlerは自動車や、バスに亜麻繊維複合材料を使用できることを示した[30]。

亜麻繊維強化ポリエステル樹脂複合材料は、熱劣化および難燃性、表面特性および接着に対する化学処理効果[31]、および吸水率と機械的特性に及ぼす化学的処理効果[32]について検討されている[33]。メタクリル化大豆油、メタクリル酸変性大豆油、無水酢酸化大豆油から得られた三種類の樹脂が亜麻繊維強化複合材料のマトリックスとして使用された例もある。

大麻(Hemp)はもう一つの注目すべき靱皮繊維作物であり、温帯気候で育つ一年草である。現在、大麻は欧州連合(EU)での非食品農

業の補助金の対象であり，ヨーロッパで更なる応用展開が期待されている．

大麻繊維強化PP複合材は循環性を持つ利用が可能であることが示された[34]．サイクル加工回数によらず，麻繊維/ PP複合材料の機械的特性は良好に保たれた．

エポキシ樹脂をマトリックスとする大麻繊維強化複合材料に関しては，衝撃特性に及ぼす繊維アーキテクチャの効果[35]，曲管状複合材料の性能[36]，トランスファー成形体の耐衝撃性能[37]，マイクロメカニクス[38]，大豆油およびナノ粘土で作られた混合物の影響[39]，繊維原料とする無処理大麻の有用性[40]などが検討されている．

Kunanopparatらは熱処理および可塑化効果が大麻繊維強化小麦グルテン複合材料の機械的特性に及ぼす影響を検討した[41]．

ラミー(Ramie)は，約 100 種類のイラクサ(カラムシ)科に属している．ラミーは生産地域が限定され，また他の商業的繊維より煩雑な前処理が必要であるために，利用が限られている．ラミー繊維強化PP複合材料が熔融混練と射出成形を用いて作製された[42]．様々なラミー繊維/ PP 複合材料が，繊維長・繊維含有率と繊維の前処理方法を変えることによって作製された．繊維長と繊維含有率を変化させることによって，引張強度・曲げ強度・圧縮強度が著しく増加した．しかし，この複合材料は衝撃強度と破壊伸びに劣る．その他ラミー繊維はポリエステル，エポキシ樹脂，大豆タンパク質，エポ

キシ樹脂, PP などの強化に使用されている.

ケナフ(Kenaf)はハイビスカスに属し, 約 300 ほど種類がある. ケナフは米国の新たな作物であり, 複合材料製品に使用する原料として優れた性能を示している. 本研究では種々の植物繊維を比較した結果, 高性能のケナフ繊維を原料に選択した.

木粉/ケナフ繊維強化PPの混合系繊維複合材料が, 原料を混合することが複合材料の特性にいかに関与するかを調査するために製造された[43]. 高弾性率ケナフ繊維と低弾性率木粉の含量率が混合系繊維強化複合材料の弾性率を決定することが示された. 複合材料の弾性率を予測するために導入された. ハイブリッド混合理論は, Halpin-Tsai 理論式より実験値に近い予測値を与えた.

電子ビーム照射によるケナフ繊維強化PP複合材料の劣化[44], ケナフ繊維/PP複合材料の羽繊維/PP, 再生クラフトパルプ繊維/PP, 再生紙繊維/PP複合材料との比較[45], 表面処理したケナフ繊維ポリエステル樹脂の複合材料[46], 天然ゴム/ケナフ繊維強化ポリエステル樹脂複合材料のじん性[47]などが報告されている.

1-3 天然繊維強化複合材料の製造技術

天然繊維強化プラスチック複合材料の主要な製造方法は圧縮成形, 押出成形と射出成形である.

圧縮成形は天然繊維複合材料を製造する一般的な方法であり, 高精度に高い生産性で成形することができる. 圧縮成形機は単動式圧縮成形機, 複動式圧縮成形機, 連立式圧縮成形機などに分けら

れる.

最大 10cm の長さの麦わらを PP と複合化し、圧縮成形プロセスによって軽量材料が作られた[48]. 複合材料の曲げおよび引張特性に与える麦わらの含有量、長さの影響が調べられた.

圧縮成形プロセスにより、ジュート繊維/PP複合材料[49], エチレン/プロピレン複合材料[50]とバガス繊維/PET複合材料[51]が製造され特性が調べられた.

押出成形プロセスは、ペレットの生産、半製品や部品の連続生産のため、プラスチック業界で多用されている. 単軸スクリーと二軸スクリーの両者が押出成形プロセスに使用されている. 混合効果がそれほど高くなくて良い場合には単軸押出機を使用する. 二軸押出機は混合効果に優れ天然繊維を均一に熱可塑性溶融物中に分散させることができる.

バガス繊維とクラワ繊維強化HDPE複合材料が押出プロセスによって作られた. それらの複合材料の機械的・熱的特性とカップリング剤の効果が検討されている[52,53]. 二軸押出機を用いてクラワ繊維強化PA-6複合材料も作られている[54]. 繊維含有率, 繊維長, 繊維のN₂プラズマ処理, またはNaOH溶液洗浄が力学物性に及ぼす影響が報告されている.

射出成形プロセスは、構造が複雑な成形品を製造できる. 圧縮成形と比べて、射出成形は設計の自由度に優れている.

Pickeringらは大麻繊維強化PP複合材料を射出成形機によって製

造した[55-58]. 彼らは繊維の処理方法, マイクロメカニクス, 大麻繊維の殺菌処理などについて報告している.

射出成形したパイナップル葉繊維強化ポリカーボネート複合材料に関しては, 繊維の表面処理効果が検討されている[59]. 処理したパイナップル葉繊維は複合材料の機械的特性を向上させた. 熱重量分析の結果によると, 複合材料の熱安定性は単純なポリカーボネート樹脂より低く, 繊維含量の増加に従って熱安定性が低くなった. 射出成形したジュート[60]とサイザル[61]繊維強化PP複合材料については, 熱特性, 動的粘弾性などが検討された.

PanthapulakkalとSainは大麻繊維/ガラス繊維強化ポリプロピレン混合複合材料の射出成形品の引張特性と吸水率を調べた[62]. 引張試験は吸水率が飽和値になった試料に対して行われた. 複合材料の繊維含有量の増加に従って, 天然繊維とマトリックス界面の弱さ, および吸水現象が原因となって, 強度と剛性が大幅に減少した.

亜麻, 大麻, コア麻, BKP(bleached kraft pulp)および木粉を強化材とするPP複合材料を射出成形し, 力学物性とマレイン酸変性PPの添加効果が調べられた[63]. Table 1-3に得られた結果を示す.

Bledzkiら[64]は大麻/亜麻/麦わら強化PP複合材料の射出成形において異なる繊維分離プロセス(機械的分離および, 精製と酵素での分離)の影響を検討した. 機械分離した大麻繊維強化PP複合材料は他の分離プロセスより優れた力学物性を持つことが判明した.

Table 1-3 異なる繊維強化 PP 複合材料の物性^[2,4]

Fiber type	BKP	Flax	Milled hemp	Core hemp	Wood hour
Tensile(MPa)	50	42	42	29	35
Tensile modulus (GPa)	3.0	3.2	3.0	2.3	2.9
Flexural (MPa)	78	67	70	52	59
Flexural modulus (GPa)	3.3	3.4	3.5	2.6	3.0
Notched Izod (J/m)	40	44	42	20	28
U-notched Izod (J/m)	205	150	145	100	105

1-4 本研究の目的

本研究においては、ケナフ繊維強化高分子複合材料の汎用的な製造技術に関する基礎的理解を得るために、押出成形－ペレット化－射出成形の製造方法に注目した。

一般に、製造条件が変化すると、複合材料の組成や構造に変化が起こり、物性も変化する。そのため、プラスチックや複合材料の射出成形においてはシミュレーション ソフトウェア (Autodesk® Simulation Moldflow®など)を用いて、原料の性質、製品の形および製造条件などのパラメータを入力することで、製品の性能および欠陥などを分析評価することが多い。しかし、ケナフ繊維は新しい強化材であるため、Moldflow のデータベースに含まれていない。さらに、Moldflow データベース中に含まれる従来の強化材はガラス繊維や、炭素繊維などであるが、これらは化学的に安定で加工過程における化学組成の変化を考慮する必要がない。しかし、ケナフ繊維は有機化合物の集合体であるため、複合材料の成形加工過程に寸法変化などの物理的変化だけでなく、熱分解などの化学変化を生じる可能性がある。

従って、本研究では、ケナフ繊維を強化材とする複合材料について、その押出および射出成形過程におけるケナフ繊維の物理的、化学的变化を明らかにし、ケナフ繊維強化複合材料の射出成形技術の確立のために有用な基礎的知見を得ることを目的とした。

一方、ケナフ繊維のような植物繊維はセルロース、ヘミセルロー

ス、リグニンなどの成分から構成されるので、大量の水酸基を含有し、強い親水性を表す。したがって、ケナフ繊維強化複合材料を構成する。マトリックス樹脂と強化繊維の界面親和性は低く、引張破断伸びの低下など複合材料の力学性能に悪い影響を与える。

ケナフ繊維強化複合材料の界面親和性を改善するため、我々の研究室では、高分子シランカップリング剤を合成してケナフ繊維表面を修飾することにより、マトリックス樹脂との界面接着性が向上することを明らかにした[65,66]。その際にマトリックスに用いた樹脂はポリスチレンであった。ポリスチレンは非晶性であるため、ケナフ繊維を複合化した際の構造および物性の解析において結晶化度などを考慮しなくて済む。また、ポリスチレンはTHFなどの溶媒に可溶であるため、種々の化学分析を行いやすいというメリットがある。そこで本研究においても、マトリックスはポリスチレンとした。ただし、高分子カップリング剤は用いなかった。高分子カップリング剤は成形過程中にケナフ繊維と化学反応を起こして繊維表面に結合するため、成形条件によって反応の進行度が変化する。その結果、複合材料の物性も変化する。従って、本研究が目的とする成形過程におけるケナフ繊維の変化の解明が困難になってしまう。カップリング剤を用いないことで系が単純になり、本研究の目的が達成しやすくなると考えた。

1-5 本研究の概要

本研究の対象はケナフ繊維強化ポリスチレン複合材料である。複合材料の成形加工プロセス，特に射出成形プロセスに着目する。

まず初めに第2章において，実験計画法に基づく統計分析によって，物性がバラつかない実験用試料を製造する射出成形条件を検討した。第3章では，ケナフ繊維含有量を50%まで高めて得られた射出成形体について繊維の分散状態や配向状態を観察し，繊維含有量の影響を確認した。これらの準備段階を経て，第4章では押出過程および射出過程におけるケナフ繊維の物理的・化学的变化を詳細に検討した。特に，加熱バレル温度，スクリュウ回転速度の影響に注目した。

参考文献

- [1] Ashby, Mike and Johnson, Kara 'Materials and Design, the Art and Science of Materials Selection in Product Design 'Butterworth Heinemann, *Oxford*, 2002 ISBN 0-7506-5554-2
- [2] H.M. Akil, M.F. Omar, A.A. Mazuki, S. Safiee, Z.A.M. Ishak, A.A. Bakar: Kenaf fiber reinforced composites: A review, *Materials & Design*, **32**, 4107-4121 (2011)
- [3] G. Bogoeva-Gaceva, M. Avella, M. Malinconico, A. Buzarovska, A. Grozdanov, G. Gentile, M.E. Errico: Natural fiber eco-composites, *Polymer Composites*, **28**, 98-107 (2007)
- [4] X. Li, L.G. Tabil, S. Panigrahi: Chemical Treatments of Natural Fiber for Use in Natural Fiber-Reinforced Composites: A Review, *Journal of Polymers and the Environment*, **15**, 25-33 (2007)
- [5] P. Wambua, J. Ivens, I. Verpoest: Natural fibres: can they replace glass in fiber reinforced plastics? *Composites Science and Technology*, **63**, 1259-1264 (2003)
- [6] K. Joseph, L.H. Carvalho, L.H. Mattoso, A. Leao, E. Frollin: Jute/cotton woven fabric reinforced polyester composites: effect of hybridization. *Natural polymers and composites conference proceedings*, 454–459 (2000)
- [7] T.T.L. Doan, S.L. Gao, E. Mader: Jute/polypropylene composites: I. Effect of matrix modification. *Composites Science and Technology*,

66,952–63 (2006)

- [8] Haydaruzzaman, R.A.Khan, M.A. Khan, A.H. Khan, M.A. Hossain: Effect of gamma radiation on the performance of jute fabrics-reinforced polypropylene composites. *Radiation Physics and Chemistry*, **78**,986–993 (2009)
- [9] B.A. Acha, M.M. Reboredo, N.E. Marcovich: Creep and dynamic mechanical behavior of PP–jute composites: effect of the interfacial adhesion. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **38**, 1507–1516 (2007)
- [10] X. Wang, Y. Cui, Q. Xu, B. Xie, W. Li: Effects of alkali and silane treatment on the mechanical properties of jute-fiber-reinforced recycled polypropylene composites. *Journal of Vinyl and Additive Technology*, **16**,183–188 (2010)
- [11] C.K. Hong, I. Hwang, N. Kim, D.H. Park, B.S. Hwang, C. Nah: Mechanical properties of silanized jute–polypropylene composites. *Journal of Industrial and Engineering Chemistry*, **14**, 71–76 (2008)
- [12] H.U. Zaman, R.A. Khan, M. Haque, M.A. Khan, A. Khan, T. Huq, N. Noor, M. Rahman, K.M. Rahman, D. Huq, M.A. Ahmad: Preparation and mechanical characterization of jute reinforced polypropylene/natural rubber composite. *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, **29**, 3064–3075 (2010)
- [13] A.N. Fraga, E. Frulloni, O. Osa, J.M. Kenny, A. Vazquez:

- Relationship between water absorption and dielectric behavior of natural fiber composite materials. *Polymer Testing*, **25**, 181–187 (2006)
- [14] A.K. Sabeel, S. Vijayarangan, A.C.B. Naidu: Elastic properties, notched strength and fracture criterion in untreated woven jute–glass fabric reinforced polyester hybrid composites. *Materials and Design*, **28**, 2287–2294 (2007)
- [15] C. Santulli: Post-impact damage characterization on natural fiber reinforced composites using acoustic emission. *NDT and E International*, **34**, 531–546 (2001)
- [16] B.N. Dash, A. Rana, H.K. Mishra, S.K. Nayak, S.S. Tripathy: Novel low-cost jute–polyester composites. III. Weathering and thermal behavior. *Journal of Applied Polymer Science*, **78**, 1671–1679 (2000)
- [17] K. Sever, M. Sarikanat, Y. Seki, G. Erkan, U.H. Erdogan: The Mechanical properties of c-methacryloxypropyltrimethoxy silane-treated jute/polyester composites. *Journal of Composite Materials*, **44**, 1913–1924 (2010)
- [18] S. Sarkar, B. Adhikari: Jute felt composites from lignin modified phenolic resin. *Polymer Composites*, **22**, 518–527 (2001)
- [19] A. Sampath, G.C. Martin: Enhancement of natural fiber–epoxy interaction using bi-functional surface modifiers. *In: SPE*

- conference. *ANTEC 2000: plastics the magical solution*. Boca Raton, FL: CRC Press, 2274–2278 (2000)
- [20] R.K. Samal, S. Acharya, M. Mohanty, M.C. Ray: FTIR spectra and physico-chemical behavior of vinyl ester participated transesterification and curing of jute. *Journal of Applied Polymer Science*, **79**, 575–81 (2001)
- [21] U.K. Dwivedi, N. Chand: Influence of fiber orientation on friction and sliding wear behavior of jute fiber reinforced polyester composite. *Applied Composite Materials*, **16**, 93–100 (2009)
- [22] B. Singh, M. Gupta, A. Verma: The durability of jute fiber-reinforced phenolic composites. *Composites Science and Technology*, **60**, 581–589 (2000)
- [23] C. Alves, P.M.C. Ferrao, A.J. Silva, L.G. Reis, M. Freitas, L.B. Rodrigues, D.E. Alves: Eco-design of automotive components making use of natural jute fiber composites. *Journal of Cleaner Production*, **1**, 1–15 (2009)
- [24] A. Mir, R. Zitoun, F. Collombet, B. Bezzazi: Study of mechanical and thermo mechanical properties of jute/epoxy composite laminate. *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, **29**, 1669–1680 (2010)
- [25] M. Sarikanat: The influence of oligomeric siloxane concentration on the mechanical behaviors of alkalized jute/modified epoxy

- composites. *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, **29**, 807–817 (2010)
- [26] K. Charlet, C. Baley, C. Morvan, J.P. Jernot, M. Gomina, J. Breard: Characteristics of Herme's flax fibers as a function of their location in the stem and properties of the derived unidirectional composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **38**, 1912–1921 (2007)
- [27] L.L. Di, W. Lorenzi: Static and dynamic properties of thermoplastic matrix/natural fiber composites – PLA/flax/hemp/kenaf. *Journal of Biobased Materials and Bio-energy*, **3**, 238–244 (2009)
- [28] V.K. Van, P. Kiekens: Effect of material and process parameters on the mechanical properties of unidirectional and multidirectional flax/polypropylene composites. *Composite Structures*, **62**, 443–448 (2003)
- [29] L.B. Harriette, J. Mussig, M.J.A. Oever: Mechanical properties of short-flax-fiber reinforced compounds. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **37**, 1591–604 (2006)
- [30] H.B. Buttlar: Natural fibre reinforced construction materials for SMC applications. *In: Conference RIKO-2005*, 1–24 (2005)
- [31] C. Baley, F. Busnel, Y. Grohens, O. Sire: Influence of chemical treatments on surface properties and adhesion of flax

- fiber–polyester resin. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **37**, 1626–1637 (2006)
- [32] S. Alix, E. Philippe, A. Bessadok, L. Lebrun, C. Morvan, S. Marais: Effect of chemical treatments on water sorption and mechanical properties of flax fibers. *Bioresource Technology*, **100**, 4742–4729 (2009)
- [33] L.B. Manfredi, E.S. Rodriguez, P.M. Wladyka: A. Vazquez, Thermal degradation and fire resistance of unsaturated polyester, modified acrylic resins and their composites with natural fibers. *Polymer Degradation and Stability*, **91**, 255–261 (2006)
- [34] A. Bourmaud, C. Baley: Rigidity analysis of polypropylene/vegetal fiber composites after recycling. *Polymer Degradation and Stability*, **94**, 297–305 (2009)
- [35] C. Santulli, A.P. Caruso: Effect of fiber architecture on the falling weight impact properties of hemp/epoxy composite. *Journal of Biobased Materials and Bioenergy*, **3**, 291–297 (2009)
- [36] G. Cicala, G. Cristaldi, G. Recca, G. Ziegmann, A. El-Sabbagh, M. Dickert: Properties and performances of various hybrid glass/natural fiber composites for curved pipes. *Materials and Design*, **30**, 2538–2542 (2009)
- [37] C. Scarponi, C.S. Pizzinelli, S. Sanchez-Saez, E. Barbero: Impact load behavior of resin transfer molding (RTM) hemp fiber

- composite laminates. *Journal of Biobased Materials and Bioenergy*, **3**, 298–310 (2009)
- [38] S.J. Eichhorn, R.J. Young: Composite micromechanics of hemp fibers and epoxy resin microdroplets. *Composites Science and Technology*, **64**, 767–772 (2004)
- [39] M. Haq, R. Burgueno, A.K. Mohanty, M. Misra: Hybrid bio-based composites from blends of unsaturated polyester and soybean oil reinforced with nanoclay and natural fibers. *Composites Science and Technology*, **68**, 3344–3351 (2008)
- [40] D.G. Hepworth, R.N. Hobson, D.M. Bruce, J.W. Farrent: The use of unretted hemp fiber in composite manufacture. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **31**, 1279–1283 (2000)
- [41] T. Kunanopparat, P. Menut, M.H. Morel, S. Guilbert: Plasticized wheat gluten reinforcement with natural fibers: effect of thermal treatment on the fiber/matrix adhesion. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **39**, 1787–1792 (2008)
- [42] T. Kunanopparat, P. Menut, M.H. Morel, S. Guilbert: Reinforcement of plasticized wheat gluten with natural fibers: from mechanical improvement to depoliticizing effect. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **39**, 777–785 (2008)
- [43] J. Mirbagheri, M. Tajvidi, J.C. Hermanson, I. Ghasemi: Tensile properties of wood flour/kenaf fiber polypropylene hybrid

- composites. *Journal of Applied Polymer Science*, **105**, 3054–3059 (2007)
- [44] S.W. Kim, S. Oh, K. Lee: Variation of mechanical and thermal properties of the thermoplastics reinforced with natural fibers by electron beam processing. *Radiation Physics and Chemistry*, **76**, 1711–1714 (2007)
- [45] T.A. Bullions, D. Hoffman, R.A. Gillespie, J.P.O. Brien, A.C. Loos: Contributions of feather fibers and various cellulose fibers to the mechanical properties of polypropylene matrix composites. *Composites Science and Technology*, **66**, 102–114 (2006)
- [46] S.H. Aziz, M.P. Ansell, S.J. Clarke, S.R. Panteny: Modified polyester resins for natural fibre composites. *Composites Science and Technology*, **65**, 525–535 (2005)
- [47] N.N. Bonnia, S.H. Ahmad, I. Zainol, A.A. Mamun, M.D.H. Beg, A.K. Bledzki: Mechanical properties and environmental stress cracking resistance of rubber toughened polyester/kenaf composite. *eXPRESS Polymer Letters*, **4**, 55–61 (2010)
- [48] Y. Zou, S. Huda, Y. Yang: Lightweight composites from long wheat straw and polypropylene web. *Bioresource Technology*, **101**, 2026–2033 (2010)
- [49] N. Chand, U.K. Dwivedi: Effect of coupling agent on abrasive wear behavior of chopped jute fiber-reinforced polypropylene

- composites. *Wear*, **261**, 1057–1063 (2006)
- [50] A.P. Kumar, R.P. Singh, B.D. Sarwade: Degradability of composites, prepared from ethylene–propylene copolymer and jute fiber under accelerated aging and biotic environments. *Materials Chemistry and Physics*, **92**, 458–469 (2005)
- [51] E. Corradini, E.N. Ito, J.M. Marconcini, C.T. Rios, J.A.M. Agnelli, L.H.C. Mattoso: Interfacial behavior of composites of recycled poly(ethylene terephthalate) and sugarcane bagasse fiber. *Polymer Testing*, **28**, 183–187 (2009)
- [52] D.R. Mulinari, H.J.C. Voorwald, M.O.H. Cioffi, M.L.C.P. Silva, T.G. Cruz, C. Saron: Sugarcane bagasse cellulose/HDPE composites obtained by extrusion. *Composites Science and Technology*, **69**, 214–219 (2009)
- [53] J.R. Araujo, W.R. Waldman, M.A. De Paoli: Thermal properties of high density polyethylene composites with natural fibers: coupling agent effect. *Polymer Degradation and Stability*, **93**, 1770–1775 (2008)
- [54] P.A. Santos, M.A.S. Spinace, K.K.G. Fermoselli, M.A. De Paoli: Polyamide-6/vegetal fiber composite prepared by extrusion and injection molding. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **38**, 2404–2411 (2007)
- [55] G.W. Beckermann, K.L. Pickering: Engineering and evaluation of

- hemp fiber reinforced polypropylene composites: fiber treatment and matrix modification. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **39**, 979–88 (2008)
- [56] G.W. Beckermann, K.L. Pickering: Engineering and evaluation of hemp fiber reinforced polypropylene composites: micro-mechanics and strength prediction modeling. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **40**, 210–217 (2009)
- [57] G.W. Beckermann, K.L. Pickering, S.N. Alam, N.J. Foreman: Optimizing industrial hemp fiber for composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **38**, 461–8 (2007)
- [58] Y. Li, K.L. Pickering, R.L. Farrell: Analysis of green hemp fiber reinforced composites using bag retting and white rot fungal treatments. *Industrial Crops and Products*, **29**, 420–426 (2009)
- [59] P. Threepopnatkul, N. Kaerkitcha, N. Athipongarporn: Effect of surface treatment on performance of pineapple leaf fiber–polycarbonate composites. *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **40**, 628–632 (2009)
- [60] T.T.L. Doan, H. Brodowsky, E. Mader: Jute fiber/polypropylene composites. II. Thermal, hydrothermal and dynamic mechanical behavior. *Composites Science and Technology*, **67**, 2707–2714 (2007)
- [61] K.L. Funga, X.S. Xinga, R.K.Y. Lia, S.C. Tjonga, Y.W. Maib: An

- investigation on the processing of sisal fiber reinforced polypropylene composites. *Composites Science and Technology*, **63**, 1255–1258 (2003)
- [62] S. Panthapulakkal, M. Sain: Injection-molded short hemp fiber/glass fiber-reinforced polypropylene hybrid composites-mechanical, water absorption and thermal properties. *Journal of Applied Polymer Science*, **103**, 2432–2441 (2007)
- [63] L. Haijun, M. Sain: High stiffness natural fiber-reinforced hybrid polypropylene composites. *Polymer – Plastics Technology and Engineering*, **42**, 853–862 (2003)
- [64] A.K. Bledzki, O. Faruk, K. Specht: Influence of separation and processing systems on morphology and mechanical properties of hemp and wood fiber reinforced polypropylene composites. *Journal of Natural Fibers*, **4**, 37–56 (2007)
- [65] Y.Xu, S.Kawata, K.Hosoi, T.Kawai, S.Kuroda: Thermomechanical properties of the silanized-kenaf/ polystyrene composites, *Express Polymer Letter*, **10**, 657-664 (2009)
- [66] C.Zheng, Y.Xu, K.Hosoi, T.Kawai, S.Kuroda: Effect of Polymeric Coupling Agent on Mechanical Properties of Kenaf Fiber / Polystyrene Composites, *Applied Mechanics and Materials*, **268-270**, 127-133 (2013)

第二章 ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料の射出成形条件に対する統計分析

2-1 緒言

資源不足と環境汚染など深刻になってきた問題を解決するために、天然繊維強化複合材料の使用が急務となってきている。ケナフ繊維による機械的強化も広く認められている[67-70]。植物繊維の一種であるケナフ繊維は、非天然繊維にはない特性を有しており、状態の制御が困難である。したがって、成形条件は、ケナフ繊維強化複合材料の製造に対して非常に重要になる[71]。また、射出成形プロセスも明らかにケナフ繊維強化複合材料の機械的特性に影響を与える。

高生産性、高自動化可能、高精度である射出成形プロセスは樹脂加工産業で広く使用されている。プラスチック歯車から自動車のバンパーに至るまで様々な製品が射出成形されている。射出成形プロセスは、基本的に射出装置と型締装置から構成された射出成形機によって行われる。

射出成形条件を調節することで材料性能を改善することもできる。Kamaruddin らは射出速度、熔融温度、射出圧力、保圧、保圧時間と冷却時間などの影響因子を調節することで成形品の収縮率を低減させた[72]。熔融温度は重要な影響要因であり、温度が高いほど収縮率が減少する。

Berginc らは金型温度が成形品の寸法及び寸法変化に最も大きな

影響を持つことを発見した[73]. 材料温度と保持圧力は成形品の肉厚に影響を与える. また, サイクル時間は製品の高精度化に対して非常に重要である. 保持圧力, 材料温度および射出速度は, 製品の品質に大きな影響を持っている.

Ozcelik らは熔融温度と射出圧力が材料の機械的性能に及ぼす影響を調査した[74].

異なる射出成形条件及び条件の組み合わせによって, 材料物性は変化する. したがって, 多くの研究では, 試験結果を改善するために, 統計分析を用いて 射出成形条件の指針を得ている.

したがって, 天然繊維強化複合材料のバラつきのない標準的射出成形条件を見出すためには, 統計分析を応用することが適当である. 以後の実験に使用するケナフ繊維強化複合材料試験片の射出成形条件に対する指針を得るために, 本章では, 繊維の使用量と, 成形条件を実験計画法に基づいて変化させながらケナフ繊維/ポリスチレン複合材料を射出成形し, 成形品の力学物性の統計分析を行うことにより, バラつきが少なく, 安定した力学物性を有する標準試料の製造条件を見出すことを目的とする. なお, 力学物性としては, 測定試料の均一性および欠陥の有無に敏感な破断応力と破断伸びに注目した.

2-2 ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料の製造

2-2-1 原料組成

使用したケナフ靱皮繊維は, 中国河南省産のケナフ全茎をレッ

ティング処理した後、水蒸気加熱洗浄によって臭いを低減し、ペレット化した。ペレット化したケナフ繊維を篩(11*11 mesh)で篩い分けた後、80℃で12時間乾燥した。実験に用いたケナフ繊維を Fig.2-1 に示す。

使用したマトリックスはPS ジャパン製 PSJ433 である。諸特性は次のとおりである。MFI (200℃, 5kgf):21 g/10min, 引張降伏強度: 19 MPa, 引張破壊ひずみ: 40%, 曲げ強さ: 34 MPa, 曲げ弾性率: 1750 MPa。原料の PS を Fig.2-2 に示す。

なお、ケナフ繊維含有量 10%の複合材料を PS/KF 10, 同じく 20%のものを PS/KF20 と表記する。

2-2-2 製造プロセスと装置

実験用ケナフ繊維を Table 2-1 に示した組成のように PS とよく混ぜた。その後、ケナフ繊維 KF と PS ペレットの割合を合わせながら押出成形機(Fig.2-3)の投入口に均一な速度で入れた。押出成形条件を Table 2-1 に示す。押出したストランドを空気中で冷却し、カットして、ペレット化した(Fig.2-4)。そのペレットを用いて、射出成形機(新潟鉄工所製 CAN II , Fig.2-5)で JIS K711-3 規格(1/2)ミニダンベル(Fig.2-6)を製造した。

2-3 射出成形条件の設定

射出成形(Injection molding)とは、加熱溶融させた材料を金型内に射出注入し、冷却・固化させることによって、成形品を得る方法である。

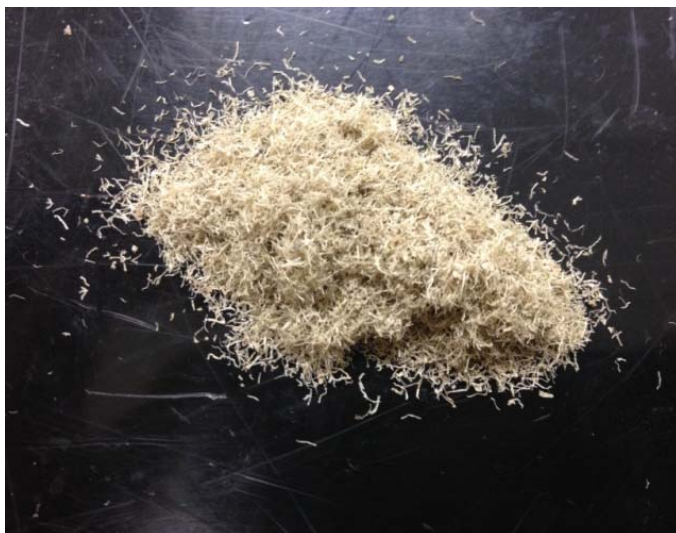


Fig.2-1 実験用二回脱臭ケナフ繊維



Fig.2-2 ポリスチレン PSJ433

Table 2-1 複合材料の原料組成と押出条件

Sample	PSJ433	Kenaf fiber
PS/KF 10%	90	10
PS/KF 20%	80	20
Extrusion conditions	Extrusion temperature	Rotation speed
	170-180-185-190℃	30rpm



Fig.2-3 二軸押出成形機（東洋精機製押出機 2D25S）



Fig.2-4 押出成形後のペレット



Fig.2-5 射出成形機（新潟鉄工所製射出成形機 CAN II）



Fig.2-6 射出成形後のダンベル
(JIS K711-3 規格(1/2)ミニダンベル)

射出成形条件の設定は二つのシステム(射出システムと型締システム)と四つの項目(温度, 圧力, 速度と時間)に基づいて考えられる.

射出システムは, ホッパー, 往復スクリューおよびバレルアセンブリー(barrel assembly), 射出ノズルから成る. 代表的な射出成形機をFig.2-7に示す.

最初原料を溶融混合した後に得られたストランドは, ペレタイザーによって切断される. 射出成形機上のホッパーにこのペレットを投入して供給する. ペレットは重力によってバレルとスクリューの間へ供給される. 射出成形機のカレル内には往復運動するスクリューが設置されている. バレルは電気ヒーターによって加熱される. 往復スクリューは材料を圧縮, 溶融, 輸送するために使用される. 往復スクリューは, 三つのゾーン(供給ゾーン, 圧縮ゾーン, 計量ゾーン)からなる.

スクリューの外径は一定のままであるが, 往復スクリューの上のフライトの深さは, 供給ゾーンから計量ゾーンの始めまで減少する. これらのフライトはバレルの内径に応じて材料を圧縮し, せん断熱を発生する. このせん断熱は, 材料溶融の主因である. バレルの外側のヒーター・バンドは, 溶融に材料を維持するのを助ける. バレルは異なる温度設定が可能でヒーター・バンドあるいはゾーンは三つ以上あることが一般的である.

ノズルは金型のスプルー・ブッシュにバレルを接続し, バレルと

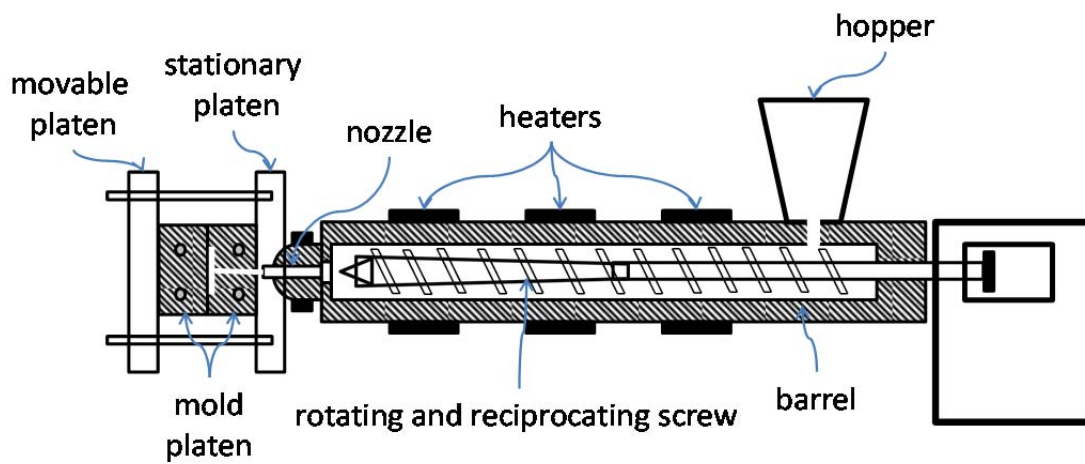


Fig.2-7 インラインスクリー式射出成形機の構造

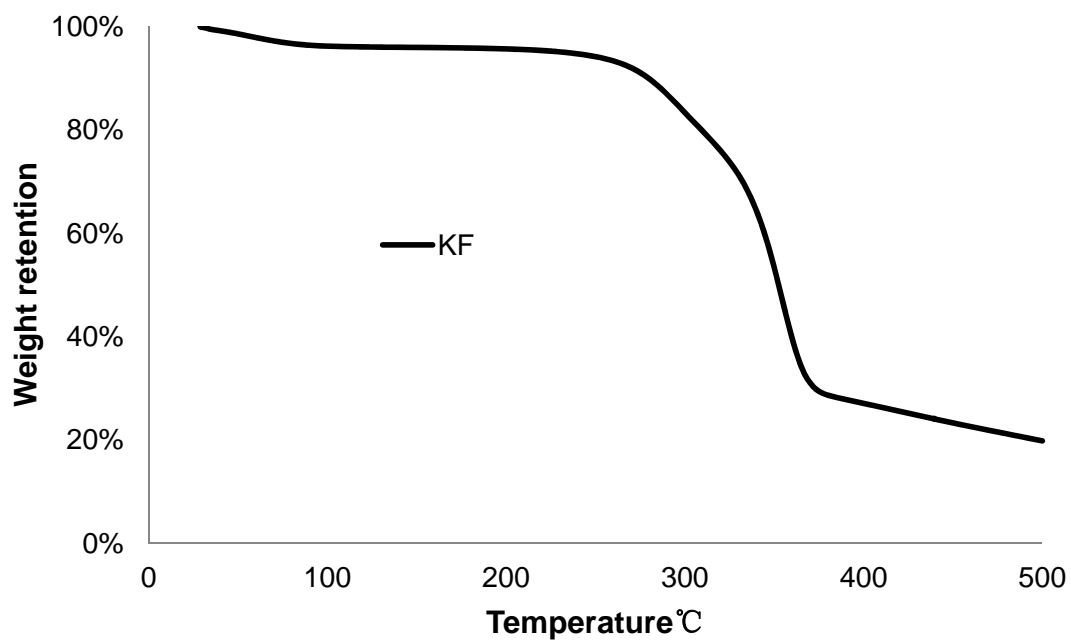


Fig.2-8 ケナフ繊維のN₂中における熱重量曲線

金型の間のシールを形成する。ノズルの温度は材料の加工温度範囲に従ってセットされる。

金型システムはタイバー、固定盤、移動盤および鋳型定盤(キャビティ、スプルー、ランナーシステム、突出しピン、冷却水路)から成る。

射出成形条件とは、要求する成形品を得るために設定する成形機のパレル温度や射出速度、金型温度などのことで、射出成形条件の組み合わせは複雑である。それらの条件によっては得られる成形品の外観や寸法、機械的物性等が変化するため、最適な設定条件を出すのには習熟した技術と経験が必要である。特に、ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料はFig.2-9に示すメルトフローインデックスでも明らかなようにケナフ繊維の含有量の増加に伴って、流動性が著しく低下するために、成形条件の影響を強く受けると考えられる。代表的な射出成形条件は以下のようになる。

加熱パレル温度(barrel temperature)は、樹脂を溶融させるための熱源となり、樹脂の溶融に必要な熱量のおおよそ半分をまかなう。射出される樹脂温度は大きく見ればシリンダ温度によって決まり、材料の成形性、成形品の物性に大きく影響する。パレル温度は射出成形条件中において最も重要な条件であり、ほかの条件に影響もある。

加熱パレル温度(barrel temperature)は、樹脂を溶融させるための熱源となり、樹脂の溶融に必要な熱量のおおよそ半分をまかなう。射

出される樹脂温度は大きく見ればシリンダ温度によって決まり、材料の成形性、成形品の物性に大きく影響する。 バレル温度は射出成形条件中においても最も重要な条件であり、ほかの条件にも影響する。

バレル設定温度が低い場合ではひけや気泡の発生が防止でき、成形サイクルも短くなる。 しかし、流動性の不足による充填不良、未熔融樹脂による外観不良などが発生する。

バレル温度を上げることにより樹脂温度が上がり流動性は良くなる。 しかし、必要以上にバレル温度を上げることは樹脂の熱分解を招くことになるので、注意しなければならない。 バレル温度の設定は射出成形機の温度制御区分の通り、後部、中央部、前部、ノズル部に分けて考える。 それぞれの設定温度は前部の温度を樹脂温度と同じか、樹脂温度より 10℃程度低く設定し、中央部の温度は前部と同じか、前部より 10℃程度低く程度設定し、後部は中央部より 10～30℃低く設定することが一般的である。 たとえば、ポリスチレンの加工温度は 170～260℃である。 この範囲を外れると、熱分解が起こる。 実際の射出実験によって、バレル温度を 200℃に設定すると、熔融PSは射出機のノズルから漏れやすくなる。 一方、添加したケナフ繊維は熱分解開始温度が約 150℃であり、バレル温度を 250℃以上にすると、熱分解が著しくなる(Fig.2-8)。 本研究では、低めのバレル温度(200℃以下)を選んで、実験を行った。 第四章では、バレル温度がケナフ繊維に対する熱損傷を詳しく分析する。

バレル後部のスクリュースクリュー供給部の役割は、材料ペレットの温度を上げることである。しかし、このゾーンでは、材料はすべて溶融する訳ではない、一部分の材料は軟化、溶融が始まる場合もあるが、ここで大部分の樹脂材料が溶融してしまうと気泡の巻き込みが起こる。材料表面の水分はここで揮発する。

バレル温度中央部のスクリュースクリュー圧縮部の役割は、樹脂材料に圧縮とせん断をかけながら溶融させることにある。圧縮するために、スクリュースクリュー径を太くすることが一般的である。この圧縮部で溶融された樹脂はせん断発熱のためにバレル後部温度よりも若干高くなる。

バレル前部に位置するスクリュースクリュー計量部においては材料の温度を均一化するために一定距離を定常送りしながら弱く混練し、その部分のバレル前部はほぼ熔融材料温度とほぼ同じ温度にすることが熔融材料温度を均一化する上で望ましい。

ホッパーから遠いノズル温度は多くの場合、ノズル部における問題を解消するために設定される。すなわち、ノズルから熔融材料が漏れるあれば、バレル前部よりやや温度を低く設定することにより漏れの現象を防ぐことができる。

ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料の射出成形製造に対して、本章では、射出成形機のバレルにおけるノズルー前部ー中央部ー後部の温度設定はそれぞれ $190^{\circ}\text{C}-190^{\circ}\text{C}-180^{\circ}\text{C}-170^{\circ}\text{C}$ 、または $195^{\circ}\text{C}-195^{\circ}\text{C}-185^{\circ}\text{C}-175^{\circ}\text{C}$ とした。

高温で溶融している材料を金型のキャビティ内へ射出注入し、冷却によって熱を奪い、材料を液体から固体へと固まらせる方法によって成形品を生産する。そのプロセスでは、金型温度（mold temperature）は、金型キャビティ付近に挿入されたセンサーまたは金型温調液の設定温度で表す。この温度により成形品の密度、剛性および外観が多少左右される。

金型温度が低すぎると、キャビティへの樹脂充填段階で樹脂温度が低下して溶融樹脂の粘度が高くなり、フローマーク、ジェットイング、ウェルドライン、充填不足が生じてしまう、また、金型温度が高すぎると樹脂の温度が高くなり過ぎてバリが生じたり、収縮が大きくなったりする。金型温度は、およそ 15～90℃の温度範囲では水冷式温度調節機を使用するのが一般的である。90℃を超える場合には加圧水型、油温度調節機を使用するか、カートリッジヒーターを用いた温度制御を行う。本章では金型設定温度は 30℃~40℃の低温にした。

制御するのは金型の温度だが、実際に重要なのはキャビティ表面温度である。これを正確に制御するためには接触式表面温度計で実測した値を頼りにして金型温度の調整を行うのが通常の方法である。高温溶融材料を冷して設定の温度を維持する。複合材料の表面光沢と伸縮率に影響がある。

射出速度（injection speed）は、射出するときのスクリュウの前進速度をいう。一般的に始めは遅く設定し、徐々に速くする。薄肉成

形品(肉厚 gapwise: 2mm 以下)には高速射出, 一般成形(肉厚:2mm 以上)には低速射出が良いことが多い. 射出速度は熔融樹脂の金型キャビティ内における流動状態とスキナーコア層(skin-core layer)の構造に対して重要な条件である. 本研究で作製したミニダンベルの肉厚は 2mm であるので, 射出成形機によって 40%~60%の最大射出速度(75mm/s)を調節できる. さらに, 射出速度は繊維強化複合材料に対して, 繊維の流動状態およびスキン層の形成に関係する.

射出速度に関する射出率(injection rate)は単位時間あたりに射出される最大体積で表示される. スクリューの直径を $D(\text{cm})$, 射出速度を $v(\text{cm/s})$, 射出ストロークを $S(\text{cm})$, 油圧バレルの直径を $D_0(\text{cm})$, 作動油流量を $Q_0(\text{cm}^3/\text{s})$ とすると, 射出率 $Q(\text{cm}^3/\text{s})$ は次式で求められる:

$$Q = \frac{\pi \times D^2 \times v}{4}$$
$$v = \frac{S}{t}$$

ここに, 射出ストローク(S)とは, 成形材料を射出するときのスクリューの移動距離のことである. 本章では, 射出成形機のストロークを 22.5mm に設定した.

射出速度が速すぎる場合には充填不良が発生する場合があります, 射出速度が遅すぎる場合にはバリ, ジェットティング (成形品表面に蛇行した模様が発生する不良) が発生する場合がある.

射出圧力 (injection pressure) は, 熔融材料を射出するときのスクリュー

スクリューの先端面にかかる圧力のことをいう。射出圧力には金型内に熔融材料を充填する一次圧(射出圧力)と、ひけなどを防止する二次圧(射出保持圧力)がある。

スクリューの径を小さくするほど射出圧力は高くなる。油圧式の射出成形機で言えば、力の発生源である油圧バレルの容積と作用する圧力で決まる。バレルの直径を $D_0(\text{cm})$ とすれば、射出力 $F(\text{kN})$ と射出圧力 $P(\text{MPa})$ は次式で計算される:

$$F = \frac{\pi \times D_0^2 \times P_0}{4}$$

$$P = \frac{F}{\pi \times \left(\frac{D^2}{4}\right)}$$

$$P = P_0 \left(\frac{D_0}{D}\right)^2$$

作用する圧力(P_0)の設定値は通常油圧の圧力で示す。その圧力を実験用射出成形の最大射出圧力(210.8MPa)の 70%, 75%, 80% に調節した。

射出圧力に関する保圧(holding pressure, 二次圧)は、金型に成形材料を射出充填後、成形品の収縮を補い、熔融材料が逆流しないためのスクリューの先端圧力のことである。保圧の設定は射出圧力より 5%~10% 低く設定する。

射出圧力が低すぎる場合には充填不良(ショートショット)が発生し、射出圧力が高すぎる場合にはパーティング面が圧力で瞬間的に開いてしまい成形品の周囲にバリが発生する場合もある。ま

た金型からの離型不良が生ずる場合もある。

ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料の成形性にとって、バレル温度と射出圧力は重要な条件である。

スクリーュー背圧 (backing pressure) は、スクリーュー回転による計量の際にスクリーューが後退するのに抵抗する力であり、これよりも大きな圧力が樹脂に発生した場合スクリーューが後退する。この設定値は通常油圧の圧力で示すが、油圧では 0.2~0.5MPa(樹脂圧では 2~5 MPa)程度が一般的である。実験用のフルフライトスクリーュー(full fight screw)で背圧を 2MPa(油圧で表す)程度にして対処することもある。

背圧の変化により材料の混練状態が変動する。本章では、背圧の調節はそれぞれ 2MPa の 40%, 50%, 60%にする。

単軸スクリーューの射出成形機では、スクリーュー回転数(screw speed)はペレット材料を混練する量を計る条件である。単位は rpm. スクリーュー回転数が早すぎると熔融樹脂内にエアーを巻き込んでしまいガスが発生しやすくなる場合がある。またスクリーュー回転数が遅すぎると十分な混練ができず材料品質がばらついてしまう場合が考えられる。一般に、射出成形機の機能の 50%程度にして使うことで、トラブルを引き起こさないように成形ができる。従って、本章では、スクリーュー回転数の調節はそれぞれ 40%, 50%, 60%にする。

射出時間 (injection time) は、充填時間と保圧時間を合わせた時

間で表れす．射出時間を変化させることで保圧時間を調整することになる．単位は s である．

射出時間の設定は以下のように考える：

射出時間(充填時間＋保圧時間)はゲートシール時間より長い．ゲートシール時間とはゲート部の樹脂が固化流動停止する時間である．ゲートシールする前に保圧を切ると，熔融した材料がゲートから逆流し，寸法や物性のばらつきが大きくなる．そり，ひけやボイトの原因はこれによることが多い．射出時間は 4s, 5s, 6s に設定する．

冷却時間（cooling time）は，成形品を金型内で固化させておく時間のことである．保圧が終了すると冷却時間に切り替わる．単位は s である．冷却時間が短すぎると収縮が大きくなり寸法が小さくなってしまい，突き出し時に変形してしまう場合もある．

ゲートシール時間を判定するには，射出時間を変化させた成形品重量を測定すればよい．射出成形の全サイクル時間 t は次式で表される： $t=t_d+t_i+t_c$ ．

中間時間 t_d は型開閉時間であり，射出時間 t_i は熔融材料のキャビティ充填時間， t_c は穴やヒケなどできないように不足分を補充する時間である．

冷却時間はキャビティ中の熔融材料が凝固し，イジェクタピンによって金型外に突出されても変形や伸びが現れない温度まで金型中で冷却固化する時間である．冷却時間の推定公式があるが，冷

却時間は射出時間の 5 倍以上に設定することが多い。

一方、冷却時間が長いと成形サイクルが長くなり生産性が低下する。つまり成形品の加工コストが上昇することになる。冷却時間は成形サイクルの条件の中で最も支配率が大きな条件なので成形サイクルを短縮するためには冷却時間をいかに短くできるかが重要な鍵を握っている。本章では、加工経験によって、冷却時間を 20s, 30s, 40s とした。

新しい材料の成形に当たっては、成形条件の条件指針が必要となる。このために、実験計画法に基づいて検討を行うことが一般的である。

実験計画法では、品質改善のための処理の効果を効率よく知るための統計技術であり、一般には実験の計画、分散分析による検定、推定の 3 段階から構成される。

本章では、実験計画法に基く統計分析によって、バラつきが少なく、安定した力学物性を有する標準試料の製造条件を見出す。

2-4 実験計画法の応用

実験計画法 (Experimental design, Design of experiments) は、効率のよい実験方法をデザインし、結果を適切に解析することを目的とする統計学の応用分野である。R.A. Fisher が 1920 年代に農学試験から着想して発展させた。また、これを基にして田口玄一による品質工学という新たな分野も生まれた。統計分析と品質工学はやり方は似ているが、目的が違う。統計分析の場合、製品性能を改善す

るために、設定できる条件を調節して性能に影響する原因を分析する。品質工学の場合、製品性能を維持するために、すなわち、製品性能が外部条件で影響されないように、設定できる条件を調節する。

条件設定の注意点は次の3点である

- 1) 全ての条件組合せは成形可能であること。
- 2) 重要な条件を漏らさないこと。
- 3) 制約される条件を慎重に抽出する。例えば、保圧は射出圧力の制約を受ける。保圧が射出圧力より大きくなるような設定は避ける。

引張実験の回数を減らすため、制御因子(control factors)と水準(factor levels)の数に従って、適切な実験直交表(orthogonal arrays)を選択して使用する。設計の目標は射出成形されたダンベル試験片がバラつきのない安定した標準試料になることにある。

本章では、実験直交表($L_{18}(2^1 \times 3^7)$)を選定した[75,76]。8つの射出成形条件に対して、2水準の1要因、3水準の7要因を用いて、Table 2-3に示す $L_{18}(2^1 \times 3^7)$ の直交表を作成した。この直交表に基づいて、ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料をダンベル状に射出成形し、引張実験を行った。

2-5 引張試験と測定結果

装置：テンシロン RTF(A & D), ロードセル(10kN UR-10KN-D), クサビ型ジョウチャック(Fig.2-11).

測定標準:JIS K 7162(ISO 527-2).

実験条件:測定速度 5mm/min, 標線間距離 40mm, チャック間距離 55mm.

一定の射出成形条件で製作したダンベル 10 個の引張実験を行い, 10 回の平均値を計算した. ケナフ繊維 10%の複合材料とケナフ繊維 20%の複合材料のダンベルから得られた引張破断応力と引張破断伸びの結果をまとめて Table 2-4 および Table 2-5 に示す.

2-6 直交表データの分散分析

射出条件のどの条件が破断応力および破断伸びに影響を持つのかを知るために, 各因子の水準別平均を求めた. 結果を Table 2-6~Table 2-9に示す. この水準別平均をプロットした要因効果図を Fig.2-12~Fig.2-15に示す.

Fig.2-12のPS/KF10の引張破断応力に対する要因効果図をみると, バレル温度(A), 金型温度(B), 射出圧力(D)と射出時間(G)の変化幅が広く, ダンベルPS/KF10の引張破断応力に大きく影響することが分かる.

大きな破断応力を得るためには, 低いバレル温度と高い射出圧力が望ましい. ここで, バレル温度が低い方が望ましいという事実は, 一般的なプラスチックの成形における傾向とは異なっており興味深い. 一方, 射出速度(C)は PS/KF10 の引張破断応力に対する影響が一番小さいと考えられる.

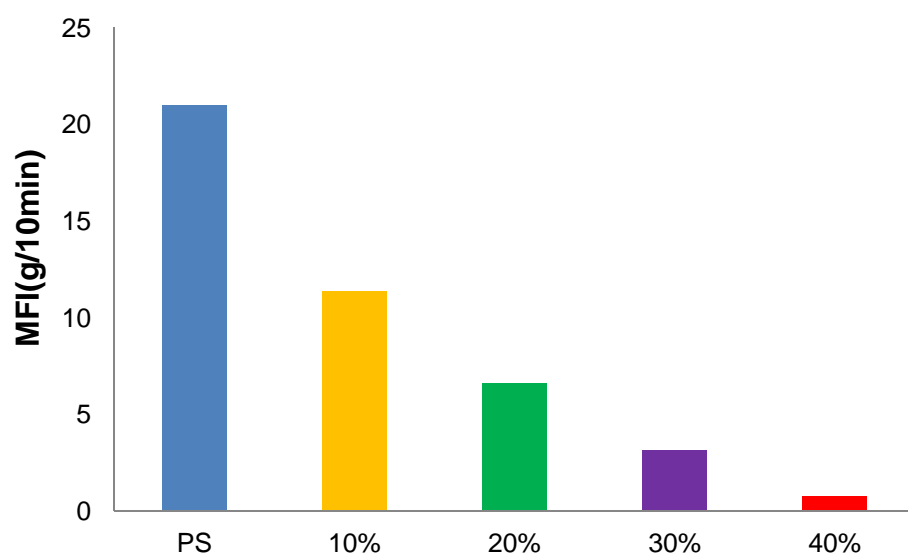


Fig.2-9 PSおよび複合材料(KF含有10~40%)のメルトフローインデックス

Table 2-2 射出成形条件とそれらの水準

Factor	Conditions	Unit	Level 1	Level 2	Level 3
A	barrel temperature	℃	190	195	
B	mold temperature	℃	30	35	40
C	injection speed	mm/s	30	37.5	45
D	injection pressure	MPa	150	160	170
E	backing pressure	MPa	0.8	1	1.2
F	screw speed	min ⁻¹	104	130	156
G	injection time	s	4	5	6
H	cooling time	s	20	30	40

Table 2-3 $L_{18}(2^1 \times 3^7)$ 直交計画表

$L_{18}(2^1 \times 3^7)$	A	B	C	D	E	F	G	H
1	I	I	I	I	I	I	I	I
2	I	I	II	II	II	II	II	II
3	I	I	III	III	III	III	III	III
4	I	II	I	I	II	II	III	III
5	I	II	II	II	III	III	I	I
6	I	II	III	III	I	I	II	II
7	I	III	I	II	I	III	II	III
8	I	III	II	III	II	I	III	I
9	I	III	III	I	III	II	I	II
10	II	I	I	III	III	II	II	I
11	II	I	II	I	I	III	III	II
12	II	I	III	II	II	I	I	III
13	II	II	I	II	III	I	III	II
14	II	II	II	III	I	II	I	III
15	II	II	III	I	II	III	II	I
16	II	III	I	III	II	III	I	II
17	II	III	II	I	III	I	II	III
18	II	III	III	II	I	II	III	I

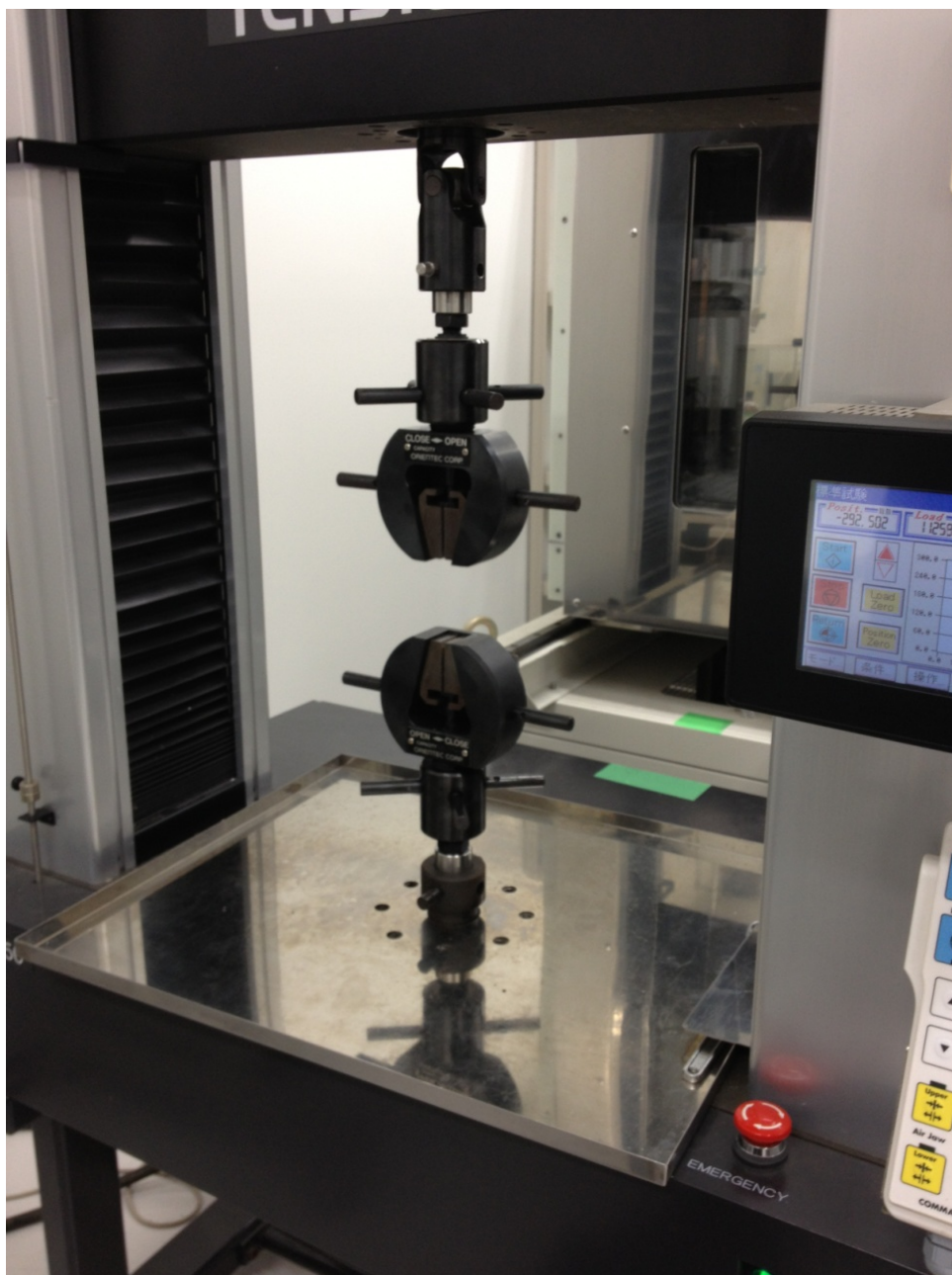


Fig.2-10 テンシロン万能実験機(RTF シリーズ)

Table2-4 直交計画表による引張実験の平均値

Run No.	Column	PS/KF10		PS/KF20	
	A B C D E F G H	Strength /MPa	Elongation /mm	Strength /MPa	Elongation /mm
1	1 1 1 1 1 1 1 1	23.01	1.732	27.19	1.303
2	1 1 2 2 2 2 2 2	23.05	1.761	26.64	1.329
3	1 1 3 3 3 3 3 3	23.56	1.771	26.80	1.309
4	1 2 1 1 2 2 3 3	23.37	1.765	25.59	1.276
5	1 2 2 2 3 3 1 1	22.90	1.735	25.43	1.365
6	1 2 3 3 1 1 2 2	23.19	1.738	28.16	1.387
7	1 3 1 2 1 3 2 3	22.65	1.728	25.47	1.332
8	1 3 2 3 2 1 3 1	23.29	1.753	26.70	1.393
9	1 3 3 1 3 2 1 2	23.07	1.724	26.07	1.320
10	2 1 1 3 3 2 2 1	22.82	1.665	25.84	1.268
11	2 1 2 1 1 3 3 2	22.58	1.687	25.21	1.248
12	2 1 3 2 2 1 1 3	23.06	1.763	26.43	1.301
13	2 2 1 2 3 1 3 2	22.65	1.707	24.75	1.278
14	2 2 2 3 1 2 1 3	23.33	1.746	26.62	1.368
15	2 2 3 1 2 3 2 1	22.14	1.631	24.76	1.264
16	2 3 1 3 2 3 1 2	22.83	1.699	25.27	1.288
17	2 3 2 1 3 1 2 3	22.18	1.638	24.53	1.296
18	2 3 3 2 1 2 3 1	22.43	1.714	25.53	1.337

Table 2-5 直交計画表による引張実験の標準偏差

Run No.	Column	PS/KF10		PS/KF20	
	A B C D E F G H	Strength /MPa	Elongation /mm	Strength /MPa	Elongation /mm
1	1 1 1 1 1 1 1 1	0.874	0.053	3.35	0.074
2	1 1 2 2 2 2 2 2	1.256	0.030	2.87	0.097
3	1 1 3 3 3 3 3 3	1.299	0.095	3.22	0.094
4	1 2 1 1 2 2 3 3	1.229	0.066	3.06	0.205
5	1 2 2 2 3 3 1 1	1.263	0.067	2.67	0.107
6	1 2 3 3 1 1 2 2	0.985	0.101	1.76	0.109
7	1 3 1 2 1 3 2 3	2.040	0.066	2.17	0.072
8	1 3 2 3 2 1 3 1	1.089	0.050	1.66	0.111
9	1 3 3 1 3 2 1 2	0.947	0.045	1.75	0.156
10	2 1 1 3 3 2 2 1	1.200	0.073	2.89	0.120
11	2 1 2 1 1 3 3 2	1.047	0.092	1.45	0.104
12	2 1 3 2 2 1 1 3	1.496	0.077	3.74	0.247
13	2 2 1 2 3 1 3 2	1.009	0.076	1.94	0.169
14	2 2 2 3 1 2 1 3	1.277	0.058	2.81	0.253
15	2 2 3 1 2 3 2 1	1.142	0.030	1.47	0.083
16	2 3 1 3 2 3 1 2	1.242	0.058	2.51	0.163
17	2 3 2 1 3 1 2 3	1.853	0.053	2.15	0.153
18	2 3 3 2 1 2 3 1	2.001	0.063	2.48	0.169

Table 2-6 複合材料 PS/KF10 の引張破断伸びに対する射出成形条件による水準別平均値

Factor	Level 1	Level 2	Level 3
Barrel temperature	1.745	1.694	
Mold temperature	1.730	1.720	1.709
Injection speed	1.716	1.720	1.724
Injection pressure	1.696	1.735	1.729
Back pressure	1.724	1.729	1.707
Rotation speed	1.722	1.729	1.708
Injection time	1.733	1.693	1.733
Cooling time	1.705	1.719	1.735

Table 2-7 複合材料 PS/KF10 の引張破断応力に対する射出成形条件による水準別平均値

Factor	Level 1	Level 2	Level 3
Barrel temperature	23.12	22.67	
Mold temperature	23.01	22.93	22.74
Injection speed	22.89	22.89	22.91
Injection pressure	22.73	22.79	23.17
Back pressure	22.87	22.96	22.86
Rotation speed	22.90	23.01	22.78
Injection time	23.04	22.67	22.98
Cooling time	22.76	22.90	23.03

Table 2-8 複合材料 PS/KF20 の引張破断伸びに対する射出成形条件による水準別平均値

Factor	Level 1	Level 2	Level 3
Barrel temperature	1.335	1.294	
Mold temperature	1.293	1.323	1.327
Injection speed	1.291	1.333	1.320
Injection pressure	1.284	1.324	1.336
Back pressure	1.329	1.309	1.306
Rotation speed	1.326	1.316	1.301
Injection time	1.324	1.313	1.307
Cooling time	1.322	1.308	1.314

Table 2-9 複合材料 PS/KF20 の引張破断応力に対する射出成形条件による水準別平均値

Factor	Level 1	Level 2	Level 3
Barrel temperature	26.45	25.44	
Mold temperature	26.35	25.88	25.60
Injection speed	25.68	25.85	26.29
Injection pressure	25.56	25.71	26.56
Back pressure	26.36	25.90	25.57
Rotation speed	26.29	26.05	25.49
Injection time	26.17	25.90	25.76
Cooling time	25.91	26.02	25.91

Fig.2-12は複合材料ダンベル PS/KF20 の引張破断応力に対する要因効果図である。ケナフ繊維含有量が増えることにより、全体的に平均値が大きくなっている。Fig.2-11 と比較すると、射出速度(C)、背圧(E)、回転速度(F)、射出時間(G)の効果に違いが見られる。これらの変化は繊維の増加に関係していると考えられる。ケナフ繊維含有量が小さい場合は、複合材料の流動状態は樹脂単体の場合と類似しているので、射出速度の作用は大きくない。しかし、ケナフ繊維含有量が多くなると、繊維の流動状態は成形条件によって複雑に変化するようである。射出時間の影響変化は小さくなっている。Fig.2-9 に示したメルトフローインデックスを見ると明らかなように、ケナフ繊維含有量が大きくなると、複合材料の流動性は著しく低下する。背圧と回転速度は複合材料の混練状態に影響する。繊維含有量が多くなると、複合材料の流動性が低いので、背圧の設定を高くして、混練効果を増加させることが有効である。回転速度は背圧とともに、複合材料の混練効果を増加させ、複合材料の均一な熔融状態を実現準備するものと思われる。しかし、混練時には、ケナフ繊維が剥離・切断される可能性がある。この点は第四章で詳しく検討する。

Fig.2-13は複合材料 PS/KF10 の引張破断伸びに対する要因効果図である。重要な条件はバレル温度(A)、射出圧力(D)と射出時間(G)である。Fig.2-11 と比べると、バレル温度と金型温度の影響の差が大きくなっている。

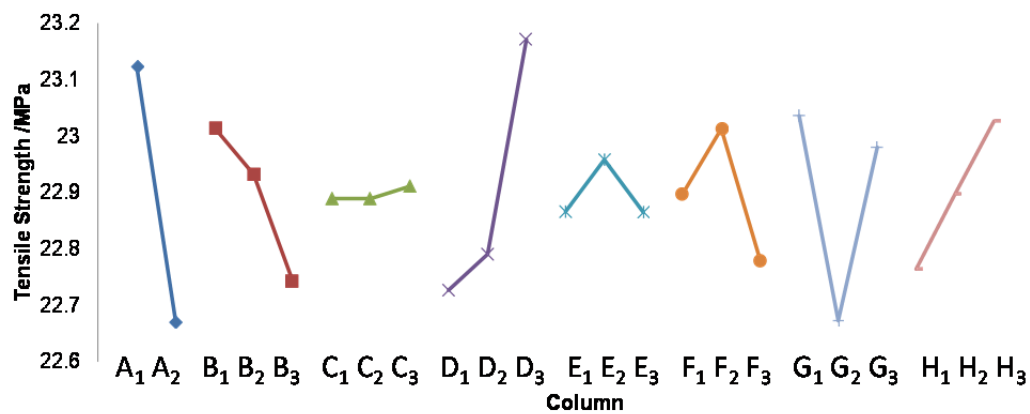


Fig.2-11 複合材料PS/KF10の引張破断応力に対する射出成形条件の水準別平均に基づく要因効果図

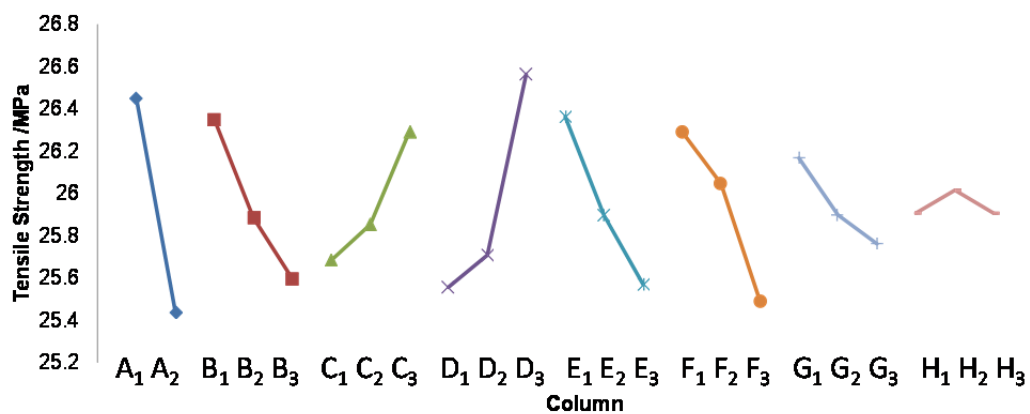


Fig.2-12 複合材料PS/KF20の引張破断応力に対する射出成形条件の水準別平均に基づく要因効果図

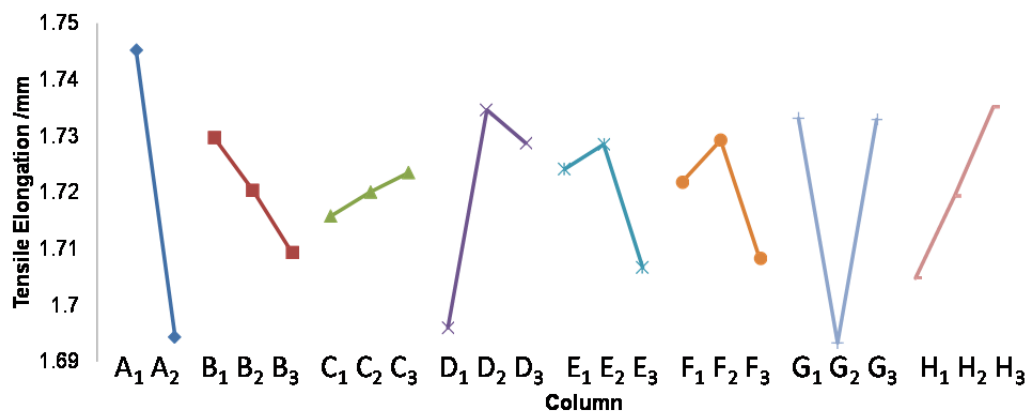


Fig.2-13 複合材料PS/KF10の引張破断伸びに対する射出成形条件の水準別平均に基づく要因効果図

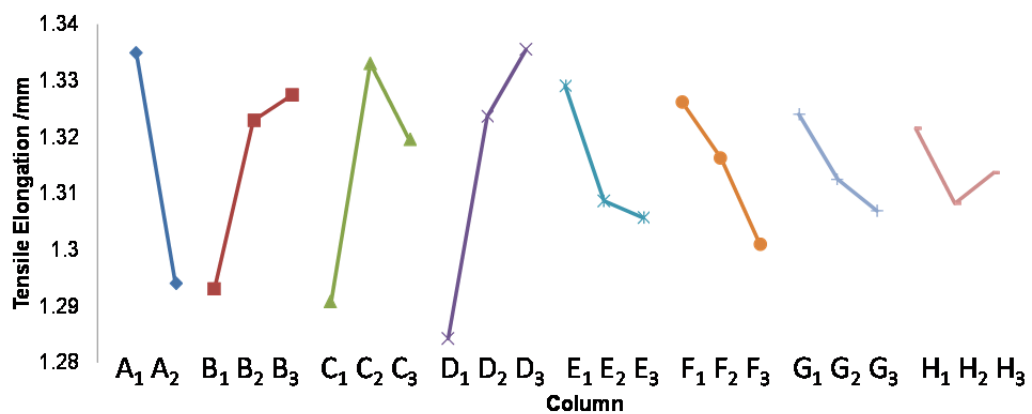


Fig.2-14 複合材料PS/KF20の引張破断伸びに対する射出成形条件の水準別平均に基づく要因効果図

Fig.2-14は複合材料ダンベルPS/KF20の引張破断伸びに対する要因効果図である。重要な条件はバレル温度(A), 射出速度(C), 射出圧力(D)である。Fig.2-12と比べると, 全体的な傾向は類似しているが, 金型温度はFig.2-12とは反対に高温ほど値が大きくなるという特異的な挙動を示している。Fig.2-13と比べると, 射出速度の影響が強くなり, 射出時間の影響は弱くなった。

続いて, より定量的に射出条件の影響を見るために, 分散分析を行った。

データの変動(全変動)を, A バレル温度, B金型温度, C射出速度, D射出圧力, E背圧F, 回転速度, G射出時間, H冷却時間に分解する。

$$S_T = S_A + S_B + S_C + S_D + S_E + S_F + S_G + S_H$$

評価したい因子を直交表にわりつけたので, このように要因系への分解が可能になる。評価サンプルに対する要因配置の直交性が確保されていない場合はこのような分解はできない。

次の手順でまず全データの2乗和, 修正項, 全変動を求めた。結果をまとめてTable 2-10に示す。

全データの2乗和:

$$23.01^2 + 23.05^2 + \cdots + 22.43^2 = 9439.05 \quad \text{①}$$

修正項:

$$CF = (23.01 + 23.05 + \cdots + 22.43)^2 = 9436.312 \quad \text{②}$$

全変動:

$$ST = 9439.05 - 9436.312 = 2.738112 \quad \text{①} - \text{②}$$

次に以下の手順で，因子による変動および分散の計算を行った．
因子毎の水準和を計算し，変動計算の一般式に代入する．

因子A: バレル温度

$$S_A = \frac{A_1^2}{9} + \frac{A_2^2}{9} - CF = \frac{208.11^2}{9} + \frac{204.02^2}{9} - 9436.312 = 0.9269773$$

因子B: 金型温度

$$\begin{aligned} S_B &= \frac{B_1^2}{6} + \frac{B_2^2}{6} + \frac{B_3^2}{6} - CF \\ &= \frac{138.09^2}{6} + \frac{137.59^2}{6} + \frac{136.45^2}{6} - 9436.312 \\ &= 0.232763 \end{aligned}$$

$$\text{分散 } \mathbf{V} = \frac{\text{変動 } \mathbf{S}}{\text{自由度 } \mathbf{f}}$$

結果を Table 2-11 から Table 2-14 に示す．まず，Table 2-10 から Table 2-14 より，破断伸びの変動・分散は非常に小さいことが分かる．つまり，本章で採用した射出条件は，いずれも，十分にバラつきが少ないダンベル試験片を製造できる条件であると言える．次に破断応力の変動・分散を見ると，ケナフ繊維含有率が 10% から 20% に増加することで，明瞭に値が増加している．繊維含有量の影響が大きいことが明らかである．この点に関しては，第 3 章でさらに検討を行う．

一方，Table 2-13 に注目すると，分散が顕著に大きい因子は，バレル温度，射出圧力，そして回転速度である．ケナフ繊維含有量の増加に従って特に影響は大きく表れるこれらの射出条件については，第 4 章で詳しく検討する．

Table 2-10 因子の全データの 2 乗和, 修正項, 全変動

	PS/KF10		PS/KF20	
	Strength	Elongation	Strength	Elongation
Sum of squares of all data	9439.05	53.26887	12130.2	31.13368
Correction function	9436.312	53.23847	12114.62	31.10231
Total variation	2.738112	0.030394	15.57938	0.031371

Table 2-11 複合材料 PS/KF10 の引張破断応力に対する射出成形条件の分散分析表

Source (Factor)	f (Degrees of freedom)	S (Variation)	V (Variance)
Barrel temperature	1	0.92	0.92
Mold temperature	2	0.23	0.11
Injection speed	2	0.00	0.00
Injection pressure	2	0.69	0.34
Back pressure	2	0.03	0.01
Rotation speed	2	0.16	0.08
Injection time	2	0.46	0.23
Cooling time	2	0.20	0.10

Table 2-12 複合材料 PS/KF10 の引張破断伸びに対する射出成形条件の分散分析表

Source (Factor)	f (Degrees of freedom)	S (Variation)	V (Variance)
Barrel temperature	1	0.011	0.011
Mold temperature	2	0.001	0.000
Injection speed	2	0.000	0.000
Injection pressure	2	0.005	0.002
Back pressure	2	0.001	0.000
Rotation speed	2	0.001	0.000
Injection time	2	0.006	0.003
Cooling time	2	0.002	0.001

Table 2-13 複合材料 PS/KF20 の引張破断応力に対する射出成形条件の分散分析表

Source (Factor)	f (Degrees of freedom)	S (Variation)	V (Variance)
Barrel temperature	1	4.62	4.62
Mold temperature	2	1.73	0.86
Injection speed	2	1.17	0.58
Injection pressure	2	3.54	1.77
Back pressure	2	1.91	0.95
Rotation speed	2	2.02	1.01
Injection time	2	0.51	0.25
Cooling time	2	0.04	0.023

Table 2-14 複合材料 PS/KF20 の引張破断伸びに対する射出成形条件の分散分析表

Source (Factor)	f (Degrees of freedom)	S (Variation)	V (Variance)
Barrel temperature	1	0.007	0.007
Mold temperature	2	0.004	0.002
Injection speed	2	0.005	0.002
Injection pressure	2	0.008	0.004
Back pressure	2	0.001	0.000
Rotation speed	2	0.001	0.000
Injection time	2	0.000	0.000
Cooling time	2	0.000	0.000

2-7 まとめ

射出成形条件は、特にその機械的特性との関係で、ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料の成形品の品質安定性に大きな影響を与える。実験計画法に基づく分散分析の結果、本章で採用した射出条件は、いずれも安定な力学物性を有する成形品を製造できることが明らかになった。一方、ケナフ繊維含有量が多い複合材料では、射出条件のバレル温度を低く設定した方が大きな破断応力になるという結果が得られたが、このバレル温度の影響は一般的な高分子材料で知られる効果とは反対の傾向であり興味深い。

また、ケナフ繊維含有量が 20% の場合には、破断応力に対するスクリュウ回転速度の影響も大きくなることを見出された。本章で注目されたバレル温度およびスクリュウ回転速度の影響については、ケナフ繊維の状態変化に着目して次章以降で検討する。なお、その際には、射出条件の影響を明瞭に観察するため、複合材料のケナフ繊維含有を高めることが望ましい、そこで、まず第 3 章において、ケナフ繊維含有量を 50% まで増加させて複合材料を成形し、成形品の特性に及ぼす繊維含有量の影響を大まかに把握することを試みる。

参考文献

- [67] M. Zampaloni, F. Pourboghrat, S.A. Yankovich, B.N. Rodgers, J. Moore, L. Drzal, A.K. Mohanty, M. Misra: Kenaf natural fiber reinforced polypropylene composites: A discussion on manufacturing problems and solutions, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **38**, 1569–1580 (2007)
- [68] P. Wambua, J. Ivens, I. Verpoest: Natural fibres: can they replace glass in fiber reinforced plastics? *Composites Science and Technology*, **63**, 1259-1264 (2003)
- [69] S. Ochi: Mechanical properties of kenaf fibers and kenaf/PLA composites, *Mechanics of Materials*, **40**, 446-452 (2008)
- [70] H.M. Akil, M.F. Omar, A.A. Mazuki, S. Safiee, Z.A.M. Ishak, A.A. Bakar: Kenaf fiber reinforced composites: A review, *Materials & Design*, **32**, 4107-4121 (2011)
- [71] R.W. Truss: Natural fibers for biocomposites, *MRS Bulletin*, **36**, 711-715 (2011)
- [72] S. Kamaruddin, Z. A. Khan, S. Foong: Application of Taguchi Method in the Optimization of Injection Moulding Parameters for Manufacturing Products from Plastic Blend, *IACSIT International Journal of Engineering and Technology*, **2**, 574-580 (2010)
- [73] B. Berginc, Z. Kampus, and B. Sustarsic: The use of the Taguchi approach to determine the influence of injection-moulding

- parameters on the properties of green parts, *J. Achievements in Materials and Manufacturing Engineering*, **15**, 63-70 (2006)
- [74] B. Ozcelik, A. Ozbay, and E. Demirbas: Influence of injection parameters and mold materials on mechanical properties of ABS in plastic injection molding, *International Communications in Heat and Mass Transfer*, **37**,1359-1365 (2010)
- [75] R.S. Rao, C.G. Kumar, R.S. Prakasham, P.J. Hobbs: The Taguchi methodology as a statistical tool for biotechnological applications: A critical appraisal, *J. Biotechnology*, **3**, 510-523 (2008)
- [76] X.H. Tuo, T.H. Kawai, S.I. Kuroda: Optimal Injection-Molding Conditions for Mechanical Properties of Kenaf Fiber Composite Materials by Taguchi Method, *Advanced Science Letters*, **19(2)**, 478-482 (2013)

第三章 ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料射出成形品における繊維の配向状態

3-1 緒言

第二章では、ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料の射出成形に関する統計分析を行ない、バレル温度、射出圧力および、回転速度が得られる成形品の品質に大きな影響を与えることを見出した。また、ケナフ繊維含有量が 10% から 20% に増加するに従って、複合材料の破断応力に関するこれらの成形条件に基づく変動・分散が増大することが認められた。

このような現象は、ケナフ繊維含有量のさらなる増加に伴って、より顕著になることが予想される。そこで本章では、ケナフ繊維の含有量を最大 50% まで変化させることにより、複合材料の成形加工性および成形体の内部構造がどのように影響を受けるかを明らかにすることを目的とする。

熔融材料は、金型キャビティ内に注入されると、低温の金型によって冷却され固化する。冷却過程では、壁に近い材料が優先的に固化するため、成形品の内部で層構造が形成される (Fig. 3-1) [77,78]。一般に、型壁近傍では冷却効率が高いために、固化速度が速く、密度が相対的に大きくなるのに対し、型壁から離れた部位では固化速度が相対的に遅くなる[79-81]。特にキャビティ中心部では相対密度も小さくなる。射出率が十分でなければ、泡あるいは充填不足などの現象が発生する場合もある[82]。成形品の表層はスキン層と呼ばれ、中央付近はコア層と呼

ばれる。スキンーコア構造は肉厚の成形品では顕著になる[83,84]。このような構造を複数種の材料を用いて積極的に生成させるサンドイッチ射出成形などもある[85]。スキン層とコア層の間には、せん断層が存在し、この部位における分子配向状態は成形体の破断挙動に大きく影響する[86,87]。

繊維強化複合材料では、繊維の配向状態は熔融樹脂の流動状況の影響を強く受ける。また、繊維含有量の増加にしたがって複合材料の流動性が低下する。複合材料の熔融状態における流れは、Fig. 3-2 に示すように蛇行すると考えられている。

このような流動の結果として生じる繊維の配向分布は、複合材料の力学物性を決定する大きな要因となる [88-91]。繊維配向を予測する理論も提案されているが、繊維含有量が少ない状態におけるシミュレーションであるために、実際の成形体における繊維配向状態とは乖離した結果となることが多い。そのために、理論の改良に向けた多くの研究がなされている [92-98]。

本章では、最初にケナフ繊維／ポリスチレン複合材料の成形性に及ぼすケナフ繊維含有量の影響を確認する。次に、得られた成形体における繊維配向状態を把握するために、成形体の断面における繊維配向を顕微鏡観察し、成形時の流動との関連を考察する。さらに、成形体の引張破断が起こる部位について、繊維配向状態の特徴を検討する。

3-2 ケナフ繊維／ポリスチレン複合材料の製造

ケナフ靱皮繊維は、中国河南省産のケナフ全茎をレッティング

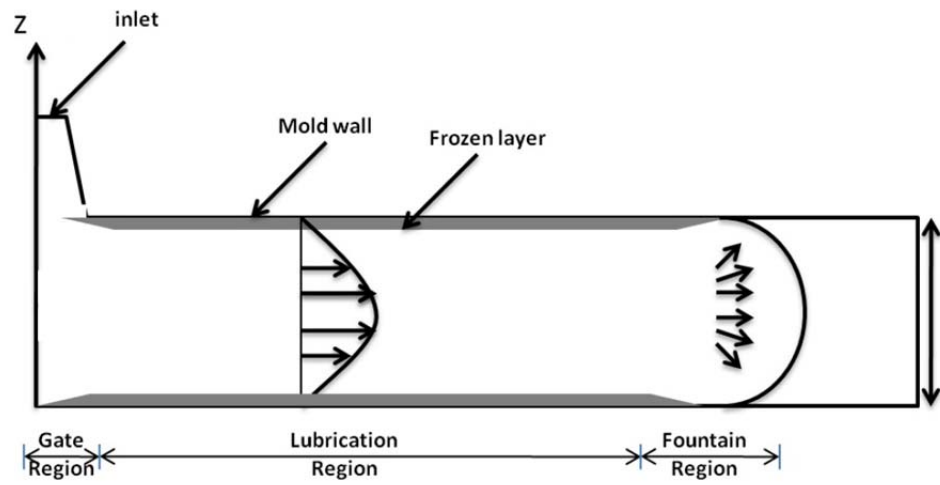


Fig.3-1 材料が金型キャビティに充填される過程^[76,81,91]

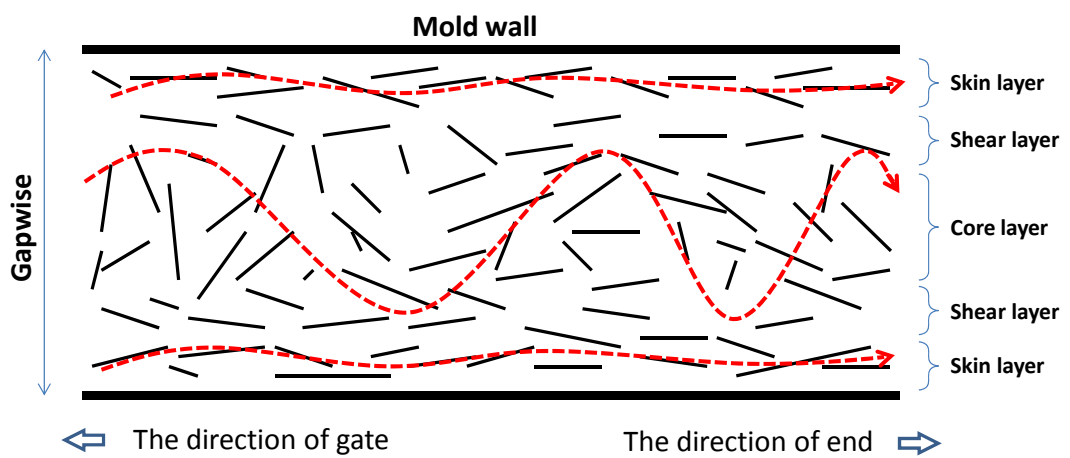


Fig.3-2 複合材料の繊維流動状態および層状構造(想像図)^[85,90,19]

処理した後、2 mm に裁断したものをを用いた。

使用したマトリックスは PS ジャパン製 PSJ433 である。諸特性は次のとおりである。MFI (200℃, 5kgf):21 g/10min, 引張降伏強度: 19 MPa, 引張破壊ひずみ: 40%, 曲げ強さ: 34 MPa, 曲げ弾性率: 1750 MPa.

所定量のポリスチレンとケナフ繊維を袋に入れて混ぜ、押出成形機の投入口に均一な速度で入れた。押出したストランドを空気中で冷却し、カットして、ペレット化した。そのペレットを用いて、射出成形機で JIS K711-3 規格(1/2)ミニダンベルを製造した。押出および射出成形条件を Table 3-1 に示す。ただし, Fig.3-3 においては, 射出圧力を 10%~70%の範囲で変化させた。なお, 複合材料中のケナフ繊維含有量は 10%から 50%の範囲で変化させた。得られた複合材料は, 含有するケナフ繊維の重量%の数値を用いて, PS/KF10, PS/KF20, PS/KF30, PS/KF40, PS/KF50 と表記する。

Table 3-1 押出および射出成形条件

Extrusion temperature	195 - 190 - 180 - 170 (°C)		
Rotation speed	30rpm		
Injection temperature	185 - 180 - 175 - 170 (°C)		
Rotation speed	102rpm	Injection pressure	70%
Mold temperature	45°C	Injection speed	70%

3-3 バレル温度および射出圧力が材料の成形性に及ぼす影響

第2章で見出されたように、ケナフ繊維／ポリスチレン複合材料の射出成形においては、バレル温度と射出圧力が大きな影響を及ぼす。Fig. 3-3 ~ Fig. 3-8 に、PS および繊維含有量 10 ~ 40% をバレル温度と射出圧力を変化させて成形した際に得られるダンベル試験片の形状を示す。ダンベル試験片の下に記された数字は射出圧力を、数字の下に記されたマークは○が良好な形状の成形体が多、×が流動不足によって成形が不完全であったことを表している。バレル温度を 185℃とした場合で比較すると、ケナフ繊維含有量が 0, 10%, 30%, 40% と増加するのに伴って、成形可能な最低射出圧力が 23%, 26%, 40%, 58% と指数関数的に増加していることがわかる。成形不良であった結果に注目すると、Fig. 3-7 に示された PS/KF30 の射出圧力 35% および 30% の結果に見られるように、複合材料の熔融状態における流れが蛇行していることが伺える。そこで、成形体における繊維の配向状態を次に観察する。

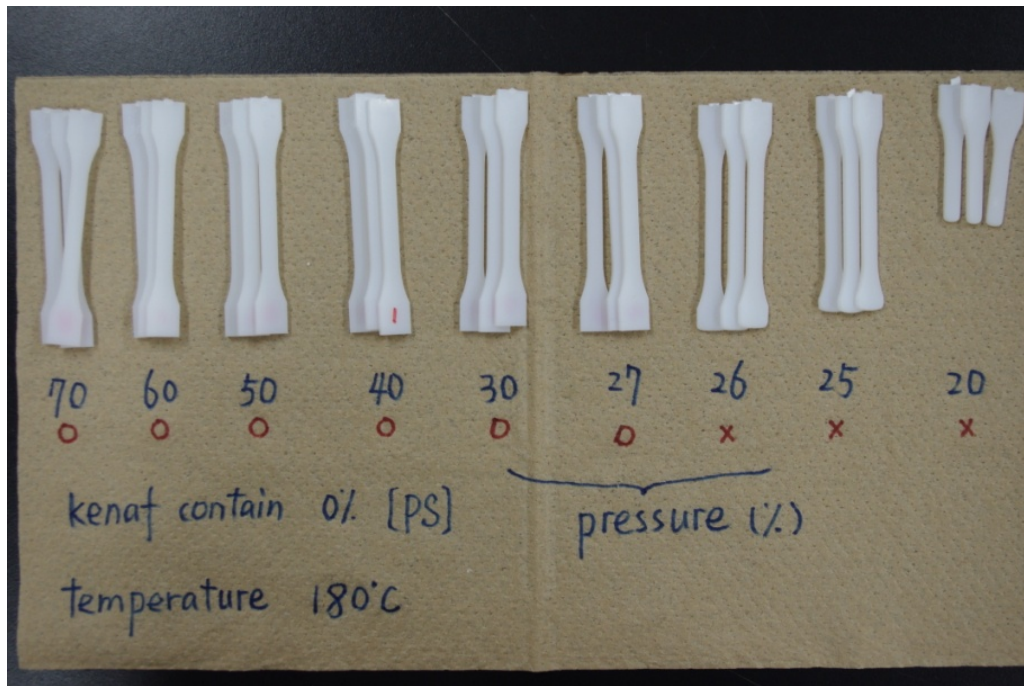


Fig.3-3 ポリスチレン材料の成形性 1

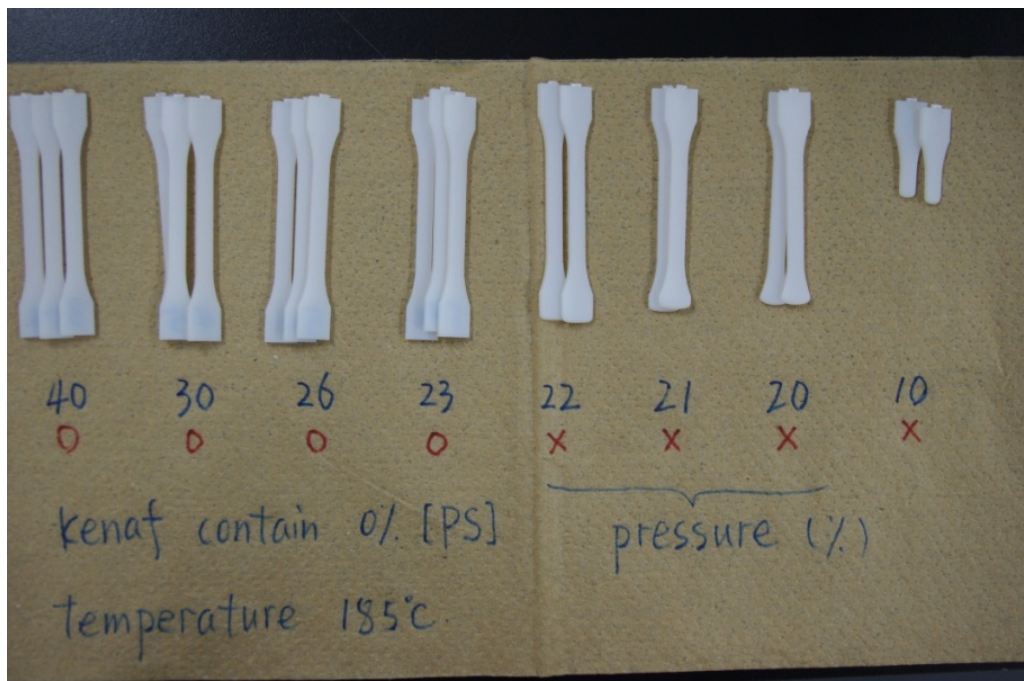


Fig.3-4 ポリスチレン材料の成形性 2

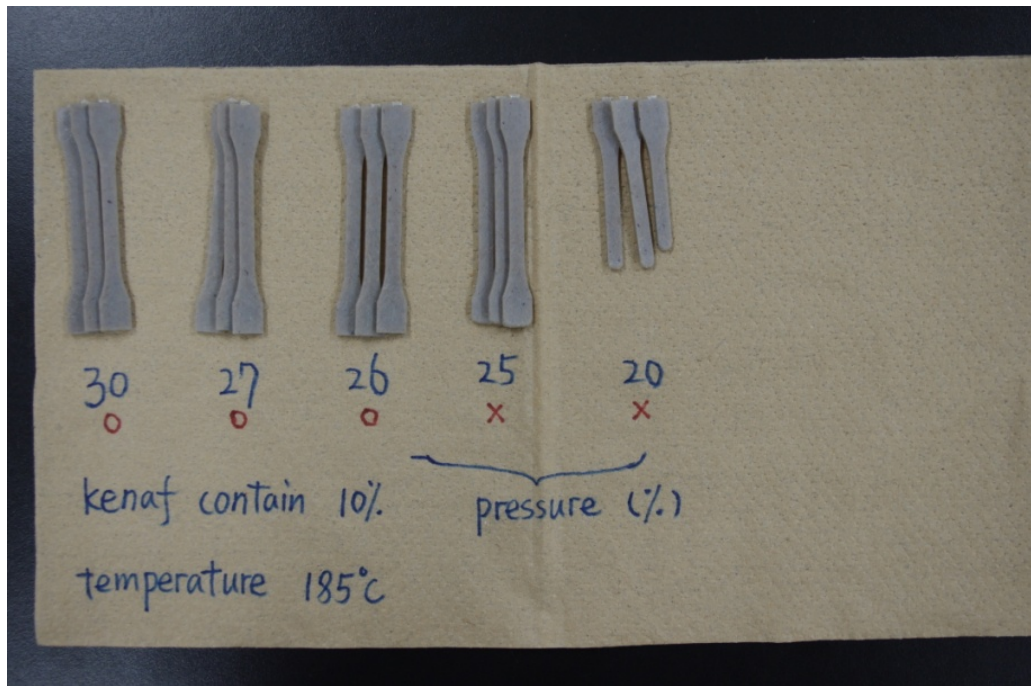


Fig.3-5 PS/KF10 複合材料の成形性

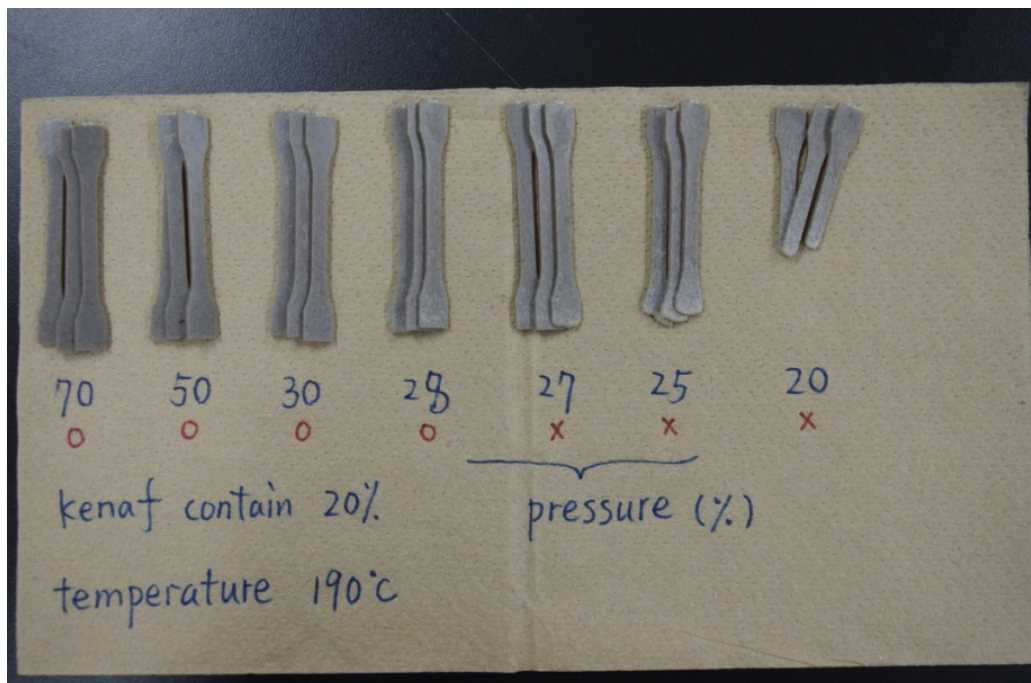


Fig.3-6 PS/KF20 複合材料の成形性

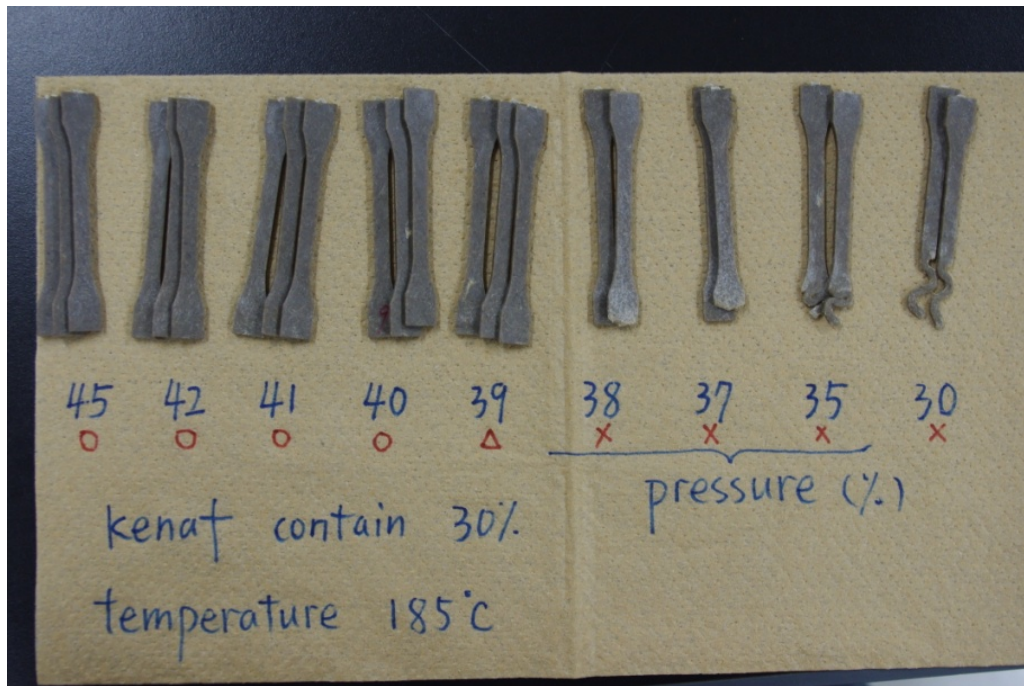


Fig.3-7 PS/KF30 複合材料の成形性

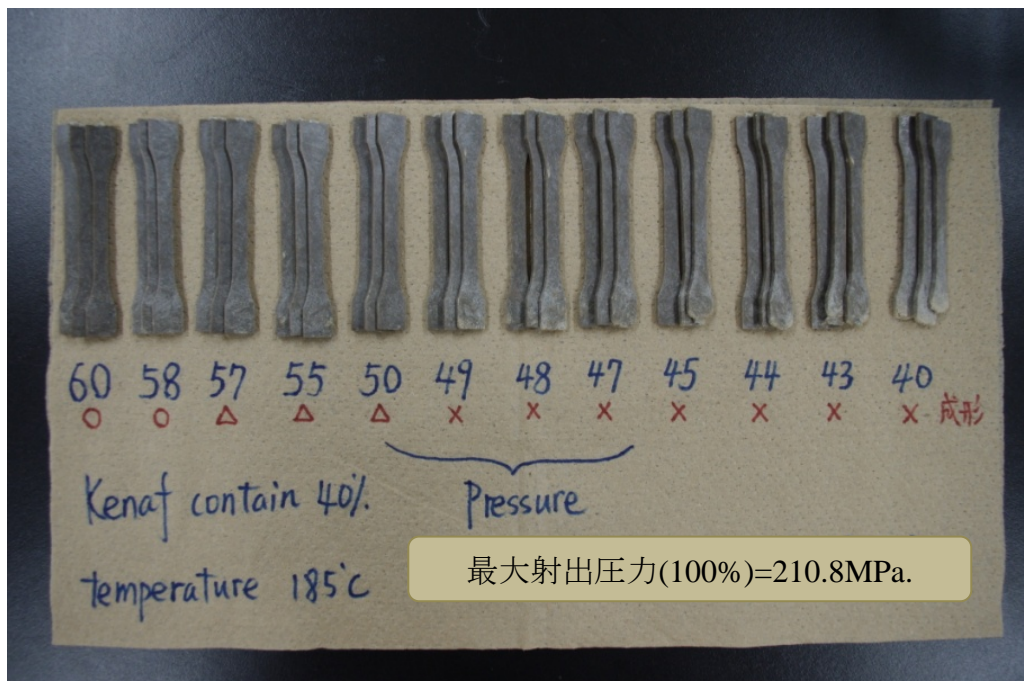


Fig.3-8 PS/KF40 複合材料の成形性

3-4 繊維配向の定義

成形されたダンベル試験片を Fig. 3-9 および Fig. 3-10 に示すように、ゲートから 5mm, 13mm, 37.5mm, 62mm, 70mm の 5 ヶ所に鋸で深さ 0.5mm の切り込みを入れて割り、断面をデジタル顕微鏡を用いて拡大率 200 倍で観察した。観察に当たっては、5mm と 70mm の位置では 5 ヶ所、13mm と 62mm の位置では 4 ヶ所、37.5mm の位置では 3 ヶ所を測定部位に選択した。

ゲートから 75mm の位置で繊維の配向状態を観察した例を Fig.3-11 に示す。デジタル顕微鏡による観察で得られた画像を 2 値化処理し、無作為に抽出した繊維断面について、長径と短径の比が $\sqrt{2}$ 以下であれば「縦」、すなわち射出方向と一致しているとし、 $\sqrt{2}$ 以上であれば「横」、すなわち面内に配向しているとした。

なお、ここで観測されたケナフ繊維の長さが原料の繊維長 2mm に比較して著しく短くなっていることに注意しなくてはならない。これは成形過程においてケナフ繊維の切断が起こっていることを意味する。この点については次章で詳しく議論する。

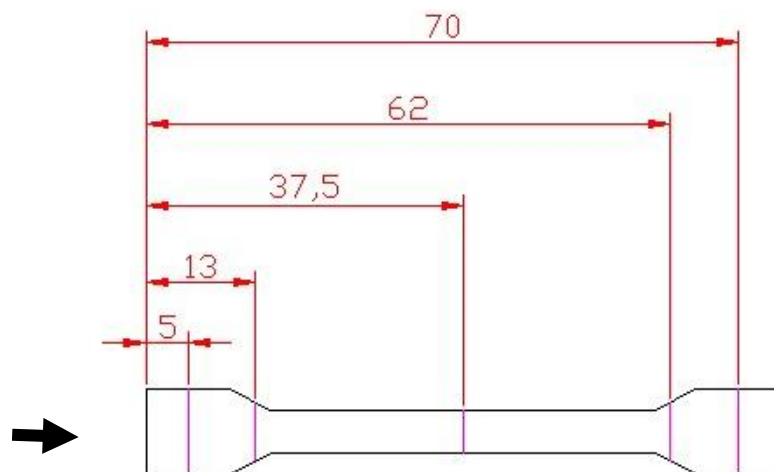


Fig.3-9 ダンベル形状と切断位置(左側のゲートからの距離(mm))

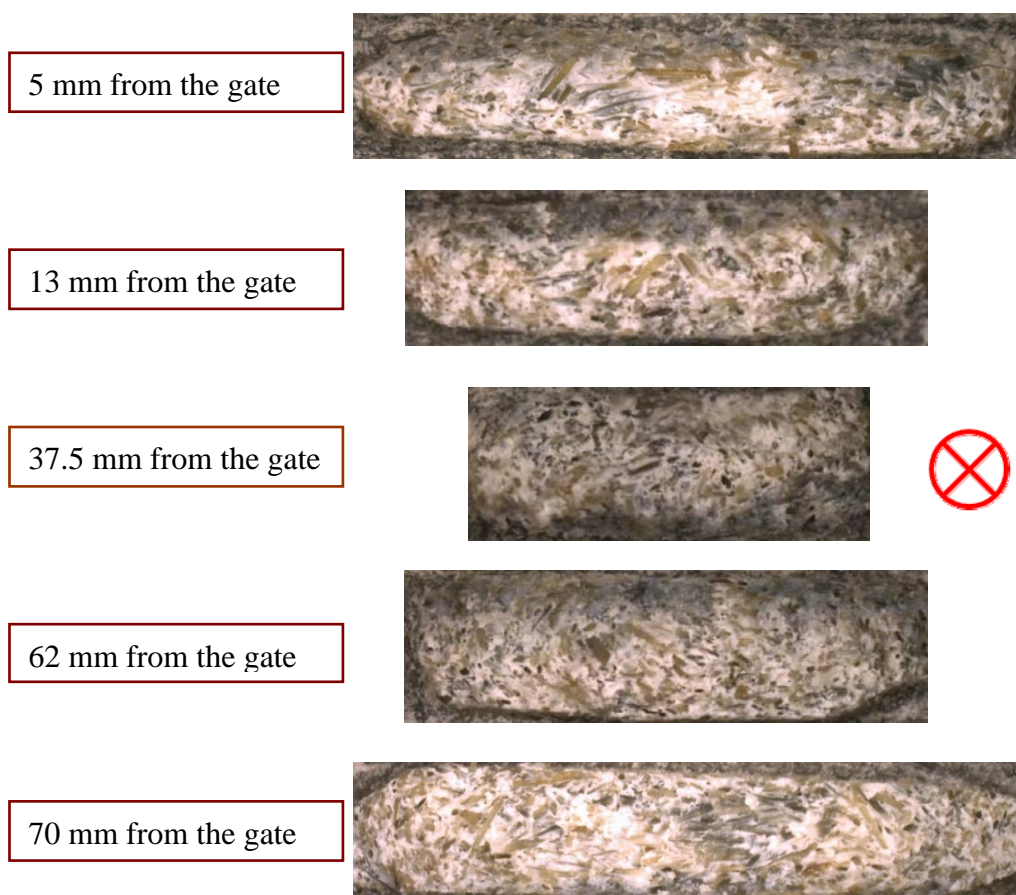





Fig.3-10 ダンベルの 5 ヲ所における断面写真

3-5 ダンベルにおける繊維配向方向の表記

3-4 で観察された各断面の繊維配向状態の解析の結果，縦繊維の方が横繊維よりも多いとき，その面における繊維の配向は「縦」であるとし，“”と示す．逆に横繊維の方が縦繊維よりも多いときは，その面における繊維の配向は「横」であるとして，“”と示す．縦繊維と横繊維が同数である場合には，繊維の配向は「無」であるとして，“”と示す．

結果を Fig. 3-12 ~ Fig. 3-16 に示す．各切断位置における観察領域の画像に記入された数字は，上段が縦繊維の数，下段が横繊維の数を表している．これより，ダンベル中央部においては繊維の配向は明らかに「縦」であるのに対し，ダンベル端部では繊維の配向は繊維含有量に伴って変化し，低繊維含有量では「縦」が多いのに対し，高繊維含有量では「横」になっている．射出過程において，最初に熔融状態の複合材料が金型に注入された時点では縦繊維の割合が多いが，填充の最終段階では，ダンベル末端において横繊維に変化するものと思われる．成形時に，ダンベル末端部で熔融樹脂が回流現象を起こしている可能性があると考えられる．

3-6 ダンベルの 5 ヲ所における繊維配向

繊維配向状態の分布をより定量的に把握するために，Fig.3-12~Fig.3-16 に示された縦繊維の数と横繊維の数をを用いて，縦繊維比率および横繊維比率を計算した．結果をまとめて Fig.3-17 に示す．これより，3 の位置すなわちダンベル中央部では縦繊維比率

が他の箇所より多いが、高々60%程度であり、ランダム配向に近いことがわかる。一方、5の位置すなわちダンベル終端部では、横繊維比率が増える傾向が認められ、特に繊維含有量の増加に伴ってその傾向が顕著になっている。ただし、繊維配向分布に対する繊維含有量の影響が表れるのは、このダンベル終端部のみで、それ以外の部位においては、繊維含有量に関わらず、ほぼ同一の繊維配向分布になっていると判断される。

3-7 引張破断箇所における繊維配向

以上で観察された繊維配向状態は、複合材料の力学物性に大きな影響を及ぼすと考えられる。特に引張破断挙動は繊維配向に敏感である。そこで、次にダンベル試験片の引張試験を行い、破断面における繊維配向状態を観察した。

引張試験は次の条件で行った：

装置：テンシロン RTF(A & D), ロードセル(10kN UR-10KN-D),
クサビ型ジョウチャック (Fig.2-11).

測定標準: JIS K 7162(ISO 527-2).

実験条件: 測定速度 5mm/min, 標線間距離 40mm, チャック間
距離 55mm.

得られた破断面に対して、3-4と同様にして、繊維配向状態を観察した。繊維含有量が異なる複合材料それぞれについて、得られた結果を5ヶ所における観察結果と合わせて Fig. 18 ~ Fig. 22 に示す。

引張破壊の起きる箇所は、繊維含有量に関わらず、ゲートから

45mm~60mm の範囲に集中しており，破断面における繊維配向は，破断面近傍の繊維配向と比較して横繊維の比率が高いことがわかる．3-5 で指摘したように，成形時にダンベル末端部では熔融樹脂が回流現象を起こしていると考えられ，ゲートから 45mm~60mm すなわち，ダンベル末端から 10mm~25mm の位置で横方向の流れが生じているものと思われる．

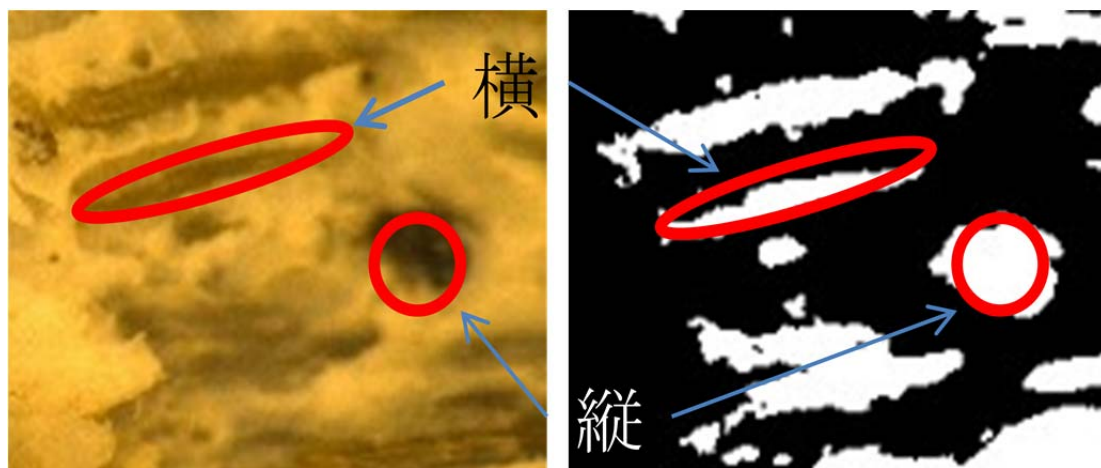


Fig.3-11 断面におけるケナフ繊維の配向状態(左:原図 右:処理図)

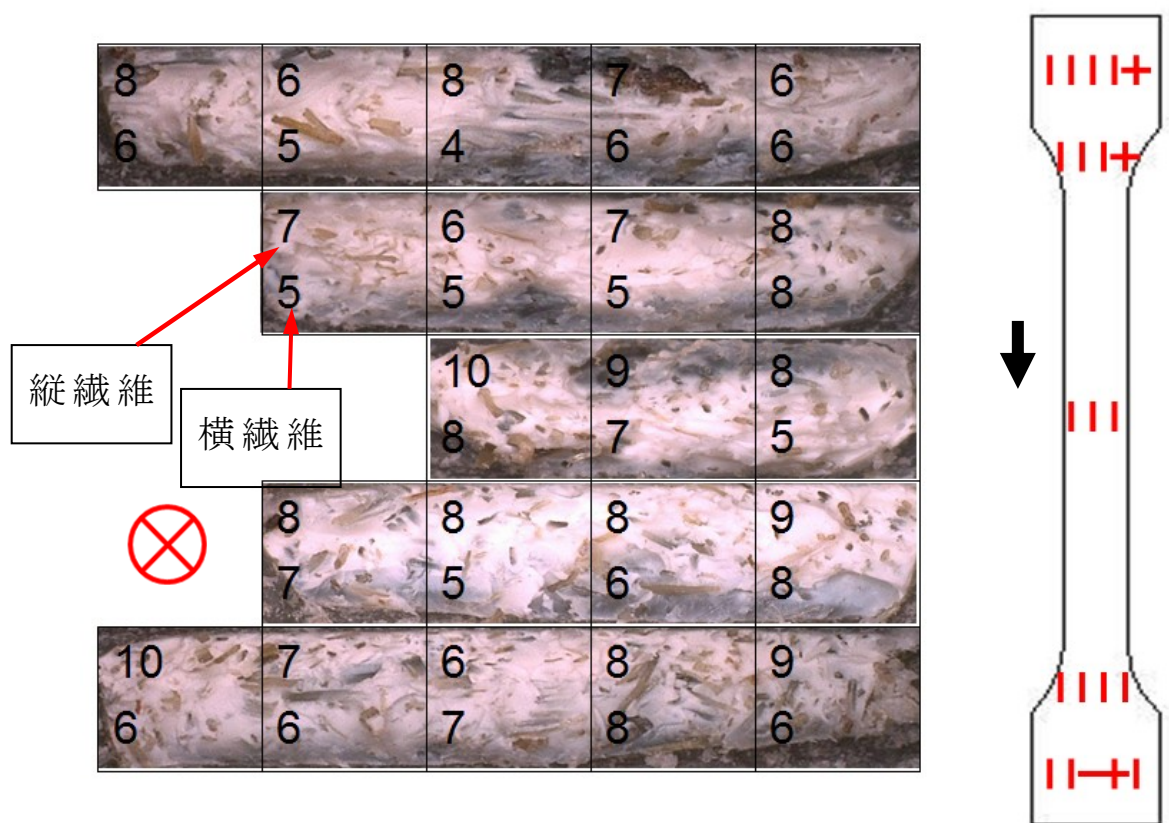


Fig.3-12 PS/KF10 の5ヵ所における繊維配向状態

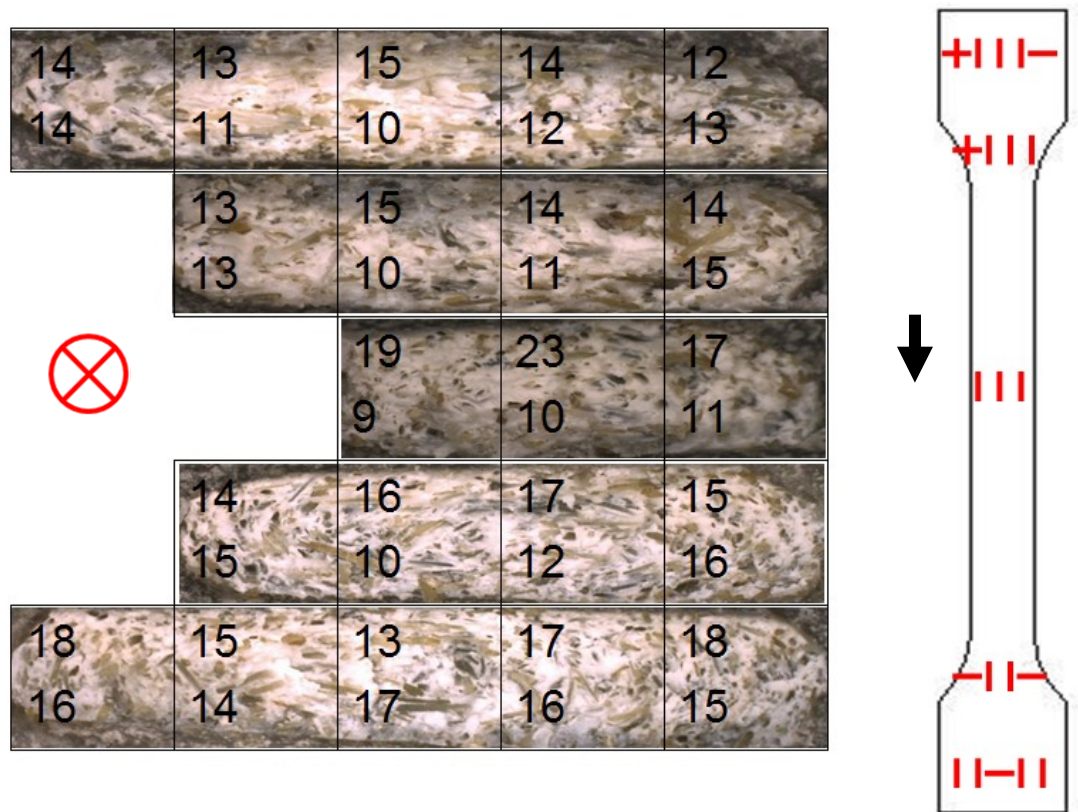


Fig.3-13 PS/KF20 の 5 カ所における繊維配向状態

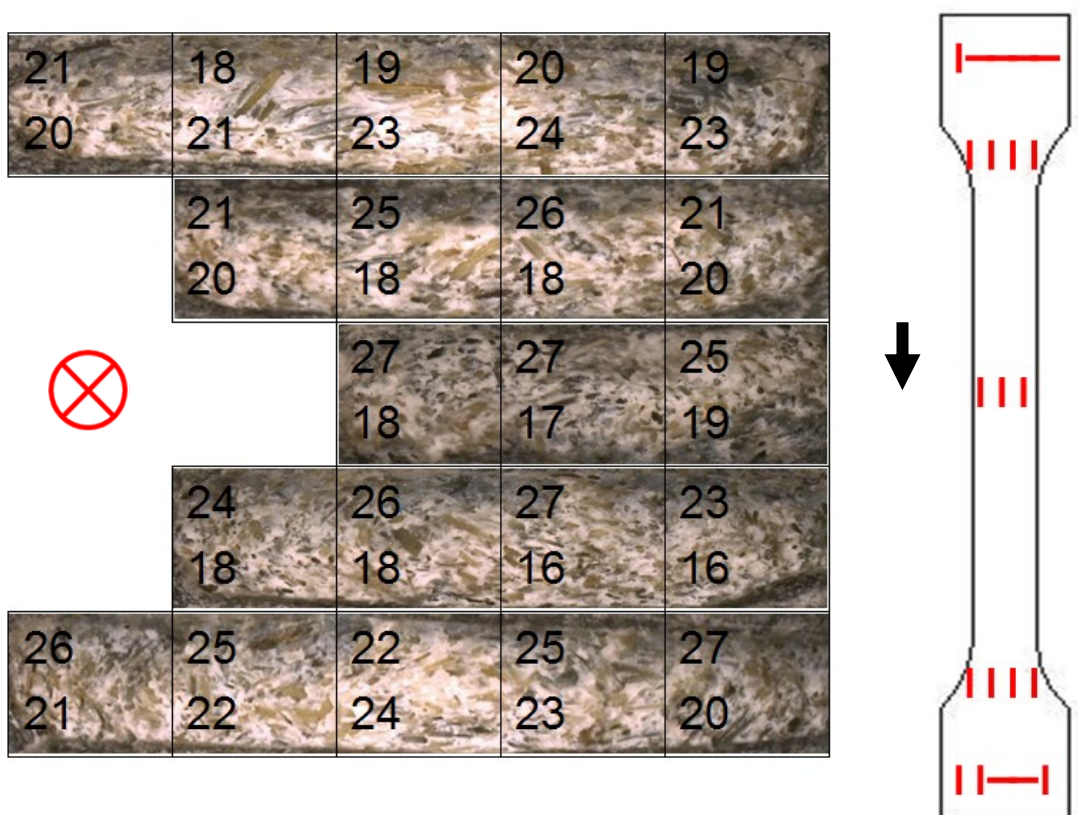


Fig.3-14 PS/KF30 の 5 カ所における繊維配向状態

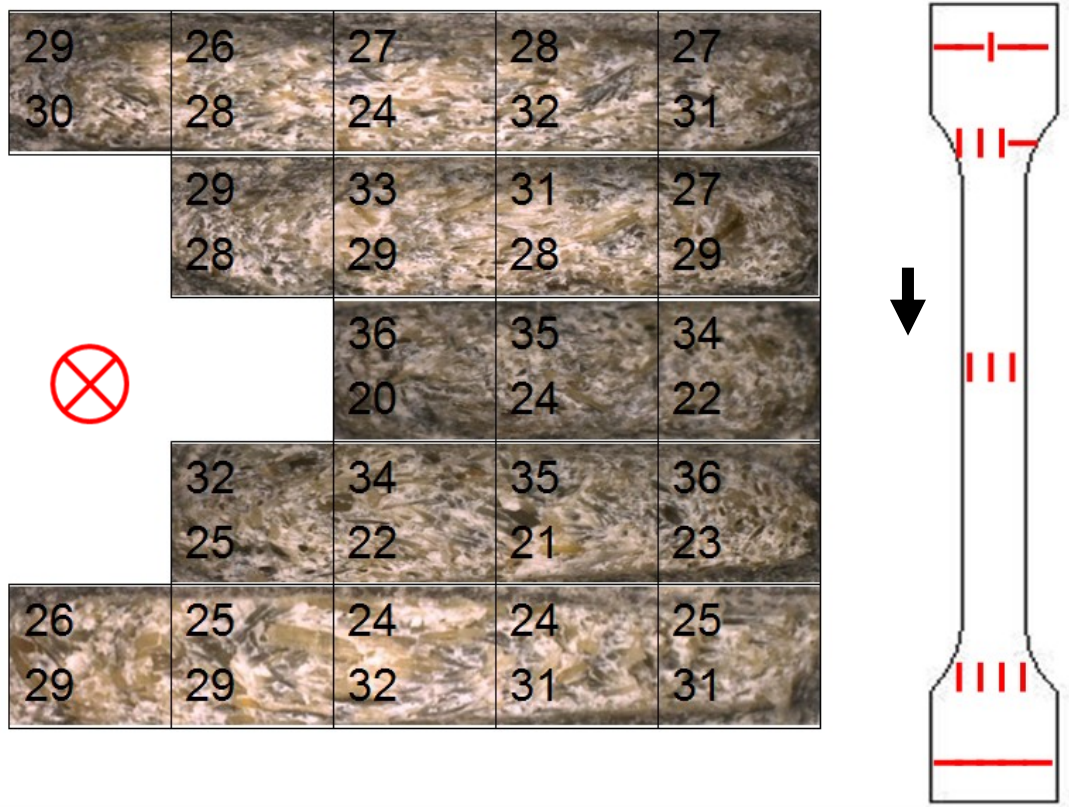


Fig.3-15 PS/KF40 の 5 ヲ所における繊維配向状態

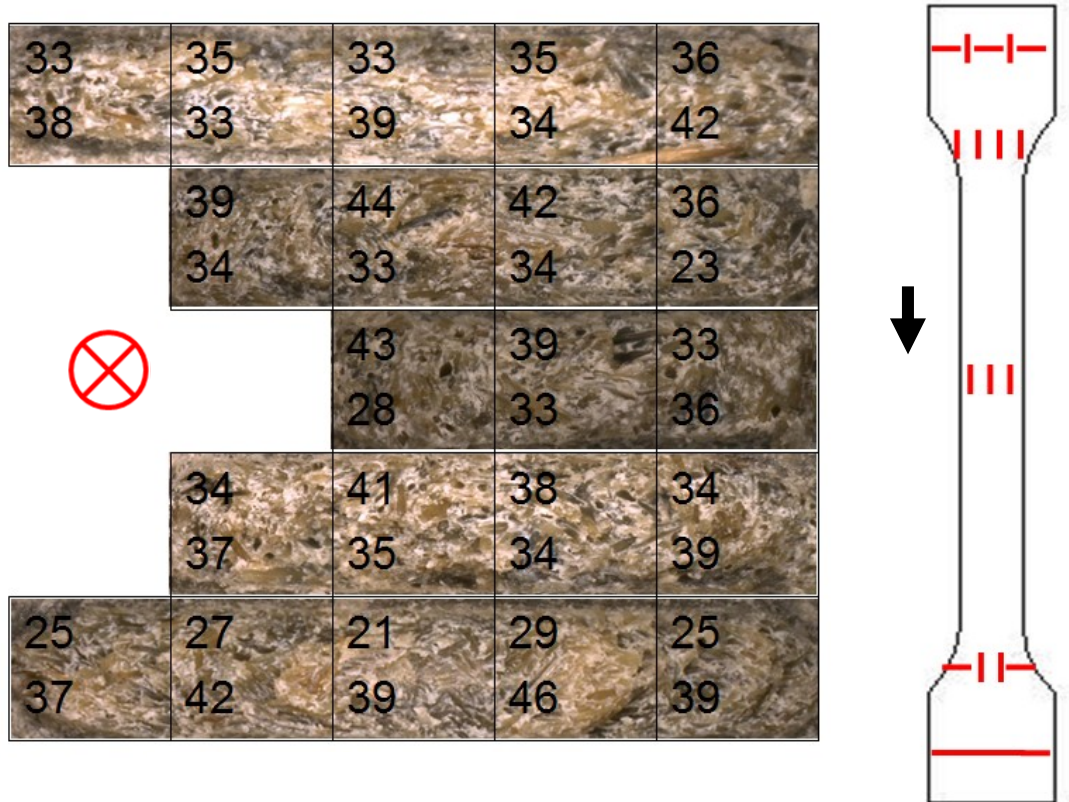


Fig.3-16 PS/KF50 の 5 ヲ所における繊維配向状態

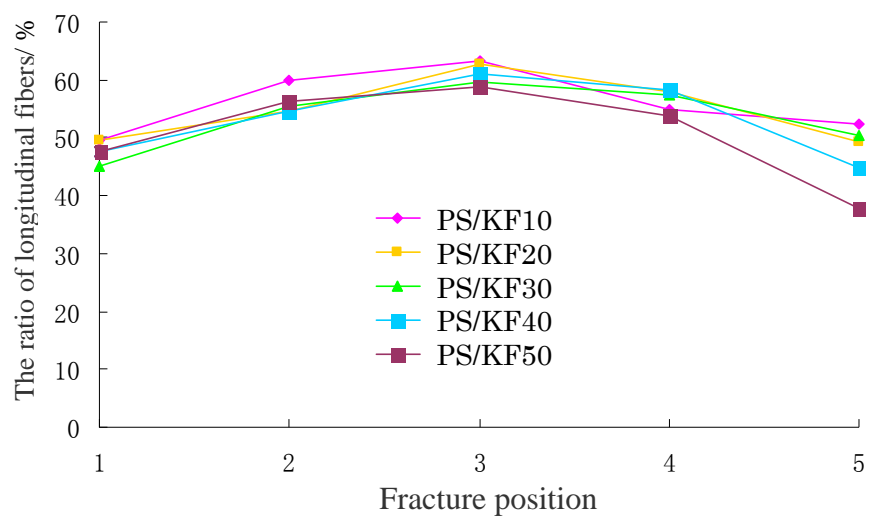


Fig.3-17 ダンベル試験片における繊維配向分布

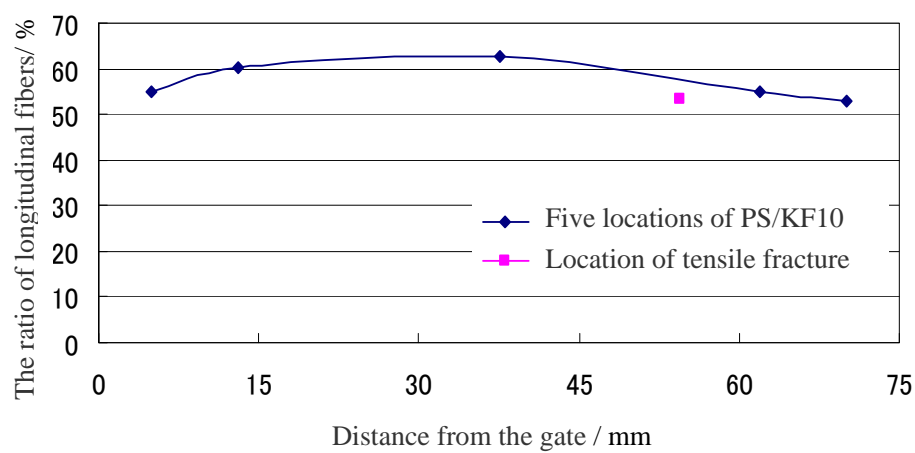


Fig.3-18 PS/KF10 における繊維配向分布と引張破断箇所における繊維配向

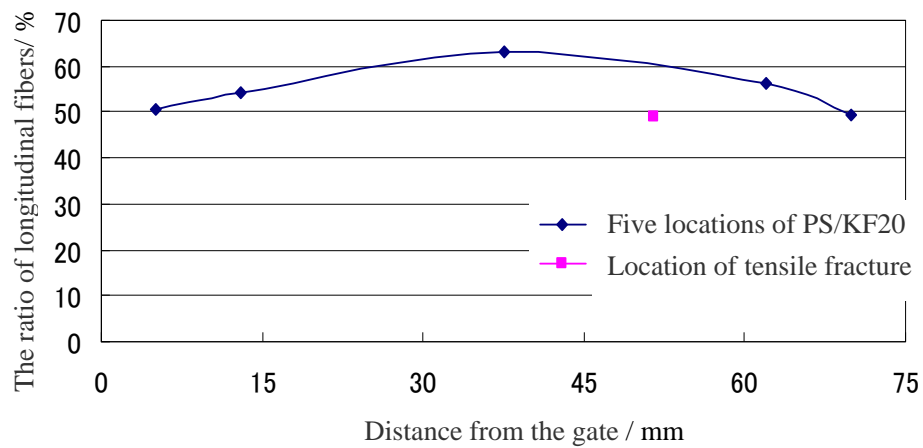


Fig.3-19 PS/ KF20 における繊維配向分布と引張破断箇所における繊維配向

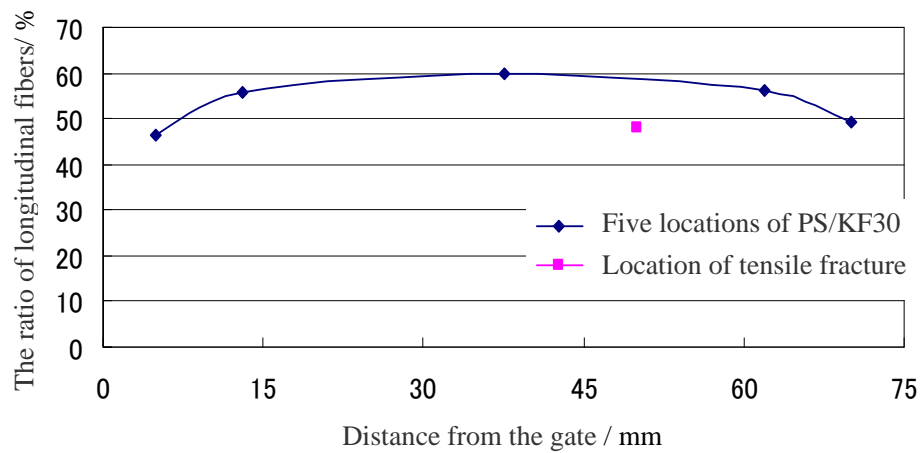


Fig.3-20 PS/ KF30 における繊維配向分布と引張破断箇所における繊維配向

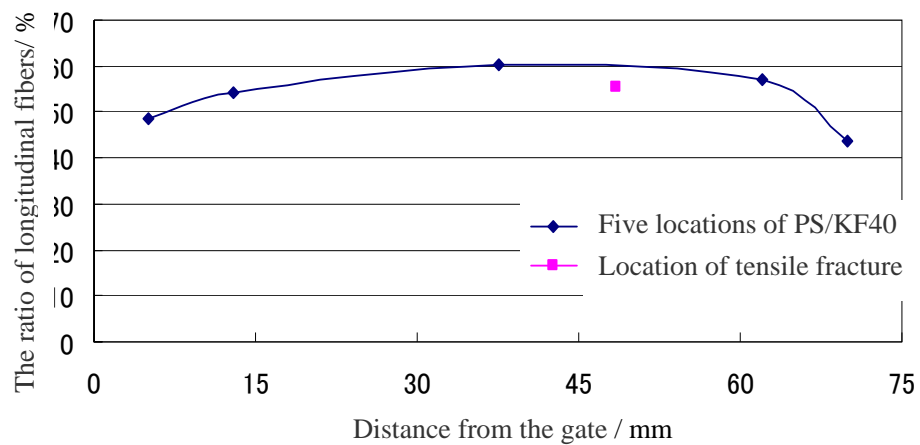


Fig.3-21 PS/ KF40 における繊維配向分布と引張破断箇所における繊維配向

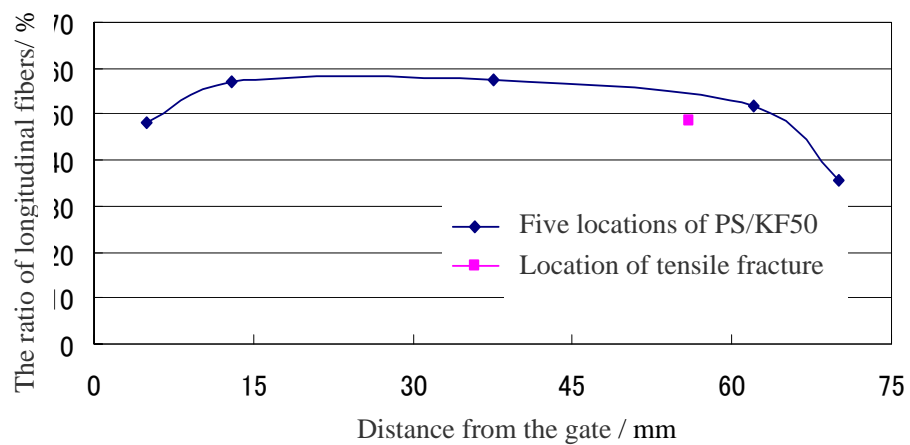


Fig.3-22 PS/ KF50 における繊維配向分布と引張破断箇所における繊維配向

3-8 まとめ

本章では、ケナフ繊維の含有量を最大 50% まで変化させることにより、複合材料の成形加工性および成形体の内部構造がどのように影響を受けるかを検討した。

まず、ケナフ繊維含有量を変化させた場合の成形性の変化を調査した。その結果ケナフ繊維含有量が増加するのに伴って、成形可能な最低射出圧力が指数関数的に増加することが明らかになった。また、射出成形時には、複合材料の熔融状態における流れが蛇行していることと推察された。

次に、成形されたダンベル試験片の複数個所における断面に対して、ケナフ繊維の配向状態を解析した結果、ダンベル中央部においては、繊維含有量によらず、繊維は射出方向に配向する傾向が認められた。ただし、射出方向への配向は 60%程度であり、ランダム配向に近い状態であることが確認された。一方、ダンベル端部では繊維の配向は繊維含有量に伴って変化し、高繊維含有量では射出方向と垂直方向に繊維が配向する傾向が認められ、ダンベル末端部で熔融樹脂が回流現象を起こしていると推定された。この現象は、引張破壊の起きる箇所が、繊維含有量に関わらず、ダンベル末端から 10mm~25mm の位置に集中するという事実によっても支持された。

なお、配向状態を観察した繊維は長さが原料に比して激減しており、成形過程でケナフ繊維の切断が起こっていることが示唆された。次章においては、成形過程における繊維の損傷について検討する。

参考文献

- [77] C. Yang, H.X. Huang, K. Li: Investigation of fiber orientation states in injection-compression molded short-fiber-reinforced thermoplastics, *Polymer Composites*, **31**,1899-1908 (2010)
- [78] H.S. Abadi, M. Ghasemi: Effects of Some Injection Molding Process Parameters on Fiber Orientation Tensor of Short Glass Fiber Polystyrene Composites (SGF/PS), *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, **26**, 1729-1741 (2007)
- [79] P. Shokri, N. Bhatnagar: Effect of Packing Pressure on Fiber Orientation in Injection Molding of Fiber-Reinforced Thermoplastics, *Polymer Composites*, **28**,214–223 (2007)
- [80] K.L. Fung, X.S. Xing, R.K.Y. Li, S.C. Tjong, Y.W. Mai: An investigation on the processing of sisal fiber reinforced polypropylene composites, *Composites Science and Technology*, **63**, 1255–1258 (2003)
- [81] K. Yasuda, T. Kyuto, N. Mori: An experimental study of flow-induced fiber orientation and concentration distributions in a concentrated suspension flow through a slit channel containing a cylinder, *Rheologica Acta*, **43**, 137-145 (2004)
- [82] S.Y. Fu, Y.W. Mai, B. Lauke, C.Y. Yue: Synergistic effect on the fracture toughness of hybrid short glass fiber and short carbon fiber reinforced polypropylene composites, *Materials Science and*

Engineering A, **323**, 326-335 (2002)

- [83] S.W. Jung, S.Y. Kim, H.W. Nam, K.S. Han: Measurements of fiber orientation and elastic-modulus analysis in short-fiber-reinforced composites, *Composites Science and Technology*, **61**, 107-116 (2001)
- [84] S.W. Lee, J.R. Youn, J.C. Hyun: Prediction of fiber orientation structure for injection molded short fiber composites, *Materials Research Innovations*, **6**, 189-197 (2002)
- [85] S. Patcharaphun, G. Menning: Prediction of Tensile Strength for Sandwich Injection Molded Short-Glass-Fiber Reinforced Thermoplastics, *Journal of Metals, Materials and Minerals*, **17(2)**, 9-16 (2007)
- [86] A. Bernasconi, F. Cosmi, D. Dreossi: Local anisotropy analysis of injection molded fiber reinforced polymer composites, *Composites Science and Technology*, **68**, 2574-2581 (2008)
- [87] R.Singh, F.Chen, F.R.Jones: Injection Molding of Glass Fiber Reinforced Phenolic Composites.2: Study of the Injection Molding Process, *Polymer Composites*, **19(1)**, 37-47 (1998)
- [88] B.Nyström, R.Joffe, R.Långström: Microstructure and Strength of Injection Molded Natural Fiber Composites, *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, **26**, 579-599 (2007)
- [89] J. Denault, T.V.U. Khanh, B. Foster: Tensile Properties of Injection

Molded Long Fiber Thermoplastic Composites, *Polymer Composites*, **10 (5)**, 313-321 (1989)

- [90] Z.Rasheva, G.Zhang, Th.Burkhart: A correlation between the tribological and mechanical properties of short carbon fibers reinforced PEEK materials with different fiber orientations, *Tribology International*, **43**, 1430–1437 (2010)
- [91] P.J.Herrera-Franco, A.Valadez-Gonzalez: A study of the mechanical properties of short natural-fiber reinforced composites, *Composites: Part B*, **36**, 597–608 (2005)
- [92] K.Chiba, F.Chinesta: Numerical simulation of flow kinematics and fiber orientation for multi-disperse suspension, *Rheologica Acta*, **45**, 1-13 (2005)
- [93] O.Babatunde, B.Agboola: Investigation of Dense Suspension Rotary Diffusion Models for Fiber Orientation Predictions during Injection Molding of Short-Fiber Reinforced Polymeric Composites (2011)
- [94] D.J.Lee, M.W.Kim, S.Y.Kim, S.H.Lee, J.R.Youn: Three dimensional flow simulation and structural analysis on stiffness of fiber reinforced anisotropic parts, *Korea-Australia Rheology Journal*, **22(2)**, 95-103 (2010)
- [95] S.I.S.Shaharuddin, M.S.Salit, E.S.Zainudin: A Review of the Effect of Molding Parameters on the Performance of Polymeric

- Composite Injection Molding, *Turkish Journal of Engineering and Environmental Sciences*, **30**, 23-34 (2006)
- [96] W.Lutz, J.Herrmann, M.Kockelmann, H.S.Hosseini, A.Jakel, S.Schmauder, S.Predak, G.Busse: Damage development in short-fiber reinforced injection molded composites, *Computational Materials Science*, **45**, 698–708 (2009)
- [97] H.Xu, C.Y.Liu, C.Chen, B.S.Hsiao, G.J.Zhong, Z.M.Li: Easy Alignment and Effective Nucleation Activity of Ramie Fibers in Injection-Molded Poly(lactic acid), *Biocomposites, Biopolymers*, **97 (10)**, 826-839 (2012)
- [98] M.Saito, S.Kukula, Y.Kataoka, T.Miyata: Practical use of statistically modified laminate model for injection moldings, *Materials Science and Engineering A*, **285**, 280-287 (2000)

第四章 ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料の成形過程における繊維の損傷

4-1 緒言

植物繊維は、再生可能な豊富な天然資源であるが、工業的な利用はいまだ限定的である。しかし、植物繊維は一般に強度や弾性率が高く密度が小さいため、比強度および比剛性が非常に大きいという特徴を有する[99,100]。従って、近年の環境保護意識の高まりにつれて、植物繊維強化高分子複合材料の製造技術に対する関心が高まっている[101,102]。特に、力学物性に優れるケナフ繊維は、幅広く研究されている[103]。わが国でも、ケナフ繊維強化複合材料は自動車や建設業界で使用されている。

しかし、植物繊維は高温処理によってしばしば熱劣化現象が現れる。植物繊維は、Fig.4-1 に示すような階層構造を有しており、Fig.4-2 に示すような化学成分から成る。ケナフ繊維の主成分は、ヘミセルロース、セルロースとリグニンである[104]。各成分の比率はそれぞれ 21%、45～57%、8～13%であり[105]、各々の熱分解温度は 150～350℃、275～350℃、250～500℃である[106,107]。ケナフ繊維強化ポリスチレン複合材料の押出温度は 170～230℃であるため、押出プロセスではヘミセルロースが熱劣化する可能性がある。ヘミセルロースは、数種類の単糖から成るポリマーで、主に繊維細胞の二次細胞壁に存在して繊維間の結合力を助長するが、植物繊維のパルプ化工程において脱リグニンに伴って溶脱するなど化学的安定性

に劣ることが知られており[108], 本研究においても, 複合材料の成形過程におけるケナフ繊維中のヘミセルロースの挙動に注目する必要がある.

高分子製品の製造は, 原料となる高分子材料のコンパウンドをペレット化する混練工程とさらに射出成型などで賦形する工程に分かれる[109]. 繊維強化複合材料の成形では, 繊維を良好に分散させるために, 二回以上の混練が必要となる場合も多い. また, 材料をリサイクル利用する際にも, 混練・射出が繰り返されることになる. このような成形工程は, 上記のように強化繊維に対する熱化学的影響だけではなく, 物理的な影響を及ぼす可能性も有している.

繊維の長さは製品の機械的特性に重要な影響を与えるため[110,111], 複合材料の製造条件が繊維サイズに与える影響に関する研究が重要である. Thomas ら[112]はサイザル繊維強化ポリプロピレン複合材料を製造する条件や方法を評価し, 繊維長の変化は処理温度と回転速度の影響を受けることを報告した. ガラス繊維強化ポリアミド 12 に関しては, 回転速度, 混合時間と供給速度を変化させて, ガラス繊維の数平均繊維長分布と重量平均繊維長分布を比較した[113]. また, 繊維強化複合材料の製造プロセスにおける繊維含有量と損傷程度の関係についても議論されている[114,115].

押出成形と射出成形の各工程における繊維の状態を比較した研究では, 射出成形が繊維サイズに大きな変化を与えることが報告されている[116,117].

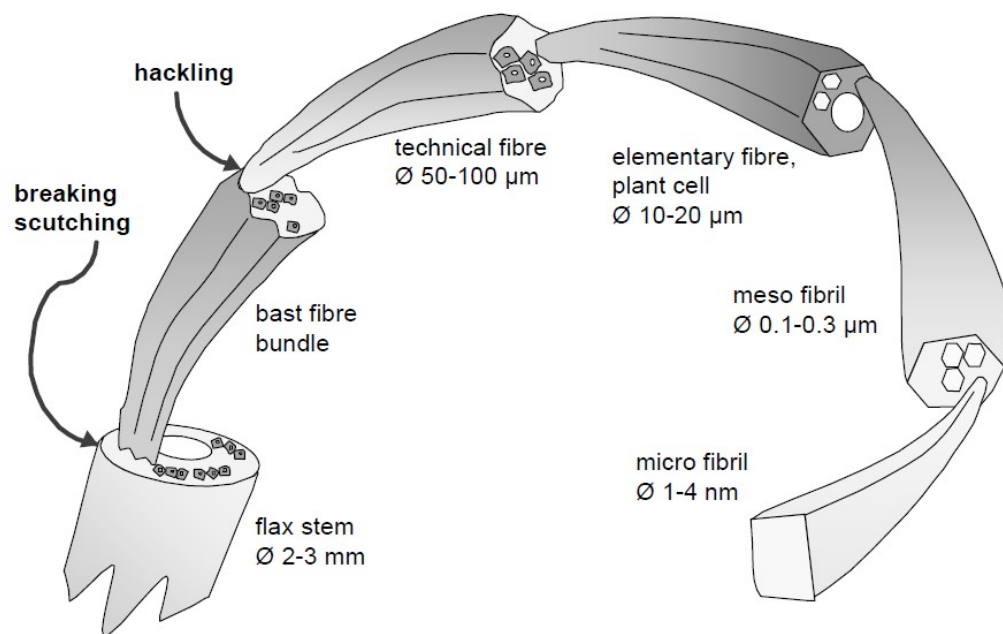


Fig.4-1 靱皮繊維の構造^[120]

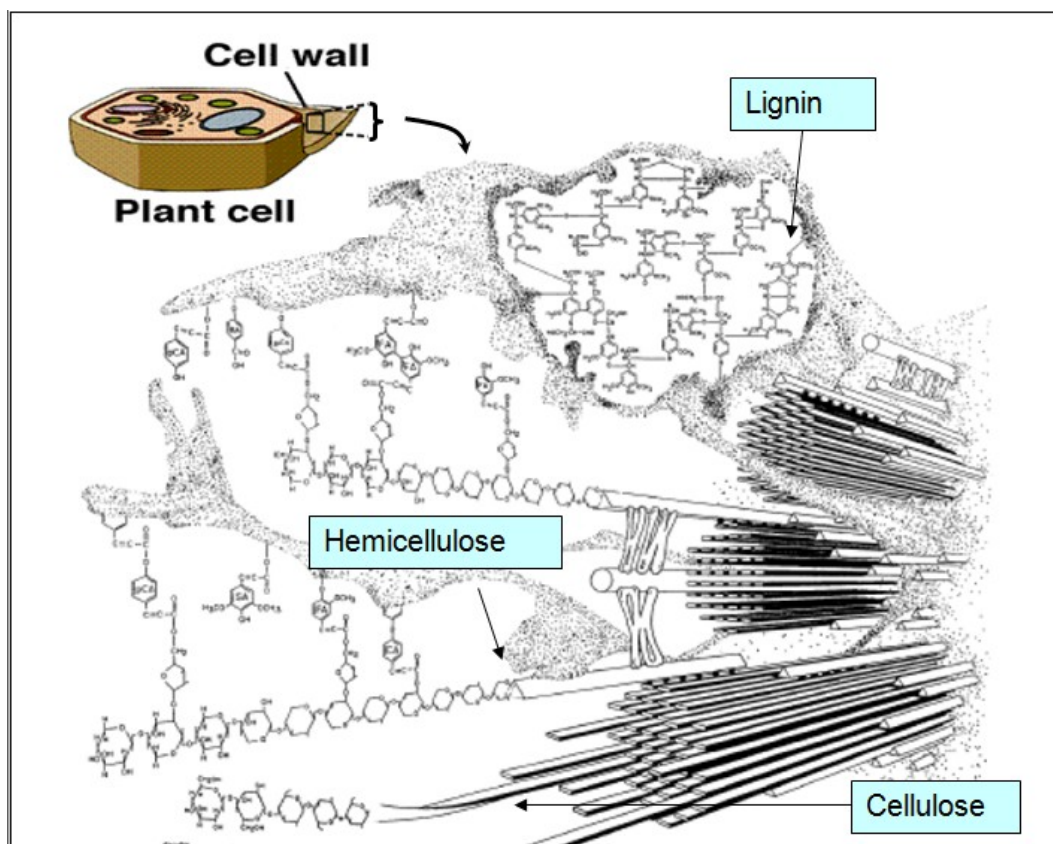


Fig.4-2 植物繊維の構造および成分

一般的に植物繊維は合成繊維よりもこのような製造工程における損傷を受けやすいため[100,101]，ケナフ繊維／ポリスチレン複合材料の製造工程におけるケナフ繊維の挙動を把握することが重要である．本章では，ケナフ繊維／ポリスチレン複合材料の押出成形，および射出成形の各工程におけるケナフ繊維の変化を明らかにすることを目的とした．なお，成形条件としては，第 2 章でケナフ繊維/ポリスチレン複合材料の射出成形条件を検討した際に重要な条件として見出された条件のうち，バレル温度およびスクリー回転速度に注目した．

4-2 実験

4-2-1 原料と製造条件

使用したケナフ繊維は，中国河南省産のケナフをレッティング処理後に水蒸気加熱洗浄法で臭いを除去した繊維を使用した．これを 11*11 mesh の篩で分級した後，80℃で 12 時間乾燥して実験に供した．

使用したマトリックスポリマーは PS ジャパン製 PSJ433 であり，MFI (200℃、5kgf)21 g/10 min，引張降伏強度 19 MPa，引張破壊ひずみ 40 %，曲げ強さ 34 MPa，曲げ弾性率 1750 MPa である．ポリスチレンとケナフ繊維 の割合は 7:3 （重量比）とし，十分に攪拌混合した後に押出成形機（Fig.4-3）の投入口に均一な速度で供給した．押出成形および射出成形の条件をそれぞれ Table 4-1、Table 4-2 に示す．

4-2-2 回収繊維の分離

本章では、THF 溶液でケナフ繊維強化ポリスチレン複合材料を溶解した後、ケナフ繊維とポリスチレン溶液を分離してケナフ繊維を取り出した。このようにして分離されたケナフ繊維を回収繊維と呼ぶ。まず、複合材料を THF を入れた容器中に浸漬し、室温で 24 時間密封・放置した (Fig.4-4)。その後振とうしてから容器の内容物を篩でろ過してケナフ繊維を分離し、THF で洗浄した (Fig.4-5)。さらに、ケナフ繊維をろ紙上で吸引ろ過し、80℃で 24 時間真空乾燥した。原料のケナフ繊維も同様に THF に浸漬、ろ別、乾燥を行った。本章では、この THF 処理したケナフ繊維を KF と表す。

4-2-3 回収繊維の熱重量分析

ケナフ繊維中のヘミセルロース成分が成形工程で除去されるかどうかを確認するために、回収繊維の熱重量分析を行った。Fig.4-6 に示す Rigaku 製 ThermoPlus TG8120 を用いて、窒素中、温度範囲 150～250℃において、昇温速度 10℃/min で測定を行った。

4-2-4 回収繊維の寸法測定

押出、射出各成形工程におけるケナフ繊維の物理的変化を確認するために、回収繊維の形状を観察した。繊維の初期状態を一定にするために、初めに繊維を分級して繊維寸法を一定にした[118,119]。2mm 長前後に裁断された原料ケナフ繊維を二種類の篩(11*12 mesh および 33*33 mesh)で分級し、繊維長を 1～4 mm にそろえた。複合材料の成形工程の前後における繊維をそれぞれ 500 本無作

為に抽出し，デジタル顕微鏡（Keyence 製 VHX-600, Fig.4-7）で 30 倍に拡大して観察し，繊維長および繊維幅を計測した[120,121].

Table 4-1 押出成形条件

Extrusion conditions	Extrusion temperature
	170-170-170-170℃ 170-175-180-190℃
Rotation speed 30rpm	170-185-200-210℃ 170-195-220-230℃

Table 4-2 射出成形条件

Injection conditions	Barrel temperature 170-175-180-190℃	Rotation speed
		30min ⁻¹
Injection pressure 160MPa	Injection speed 37.5mm/s	100min ⁻¹
		170min ⁻¹
Mold temperature 40℃	Injection time 5 s	Cooling time 20 s

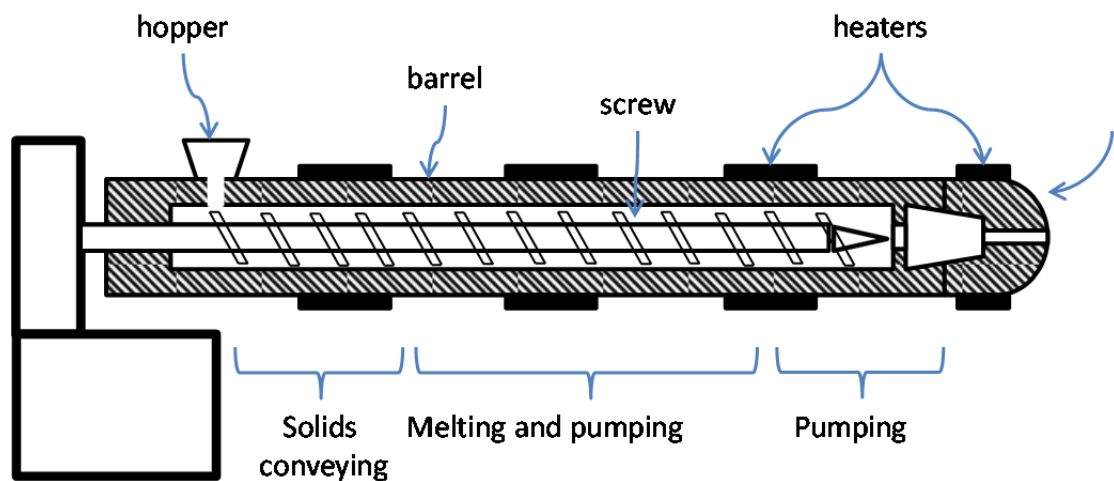


Fig.4-3 押出成形機の構造

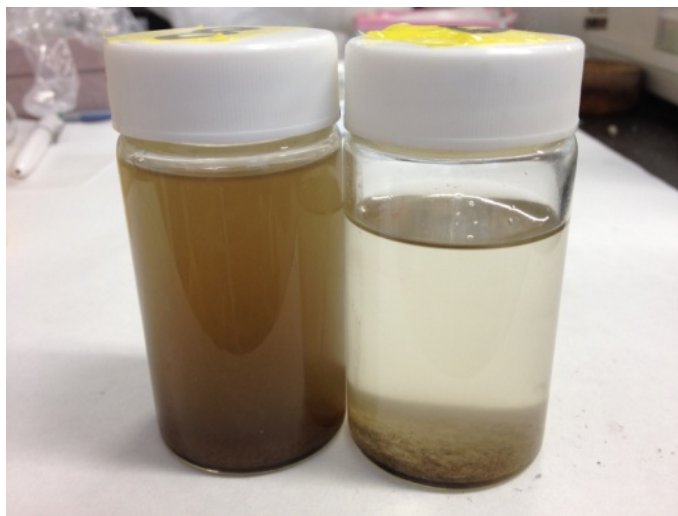


Fig.4-4 THF 中の複合材料とケナフ繊維



Fig.4-5 分離した回収繊維



Fig.4-6 ThermoPlus TG 8120



Fig.4-7 デジタル顕微鏡 VHX-600

4-3 結果および考察

4-3-1 押出工程における繊維の熱損傷

混練工程におけるケナフ繊維の熱化学的变化を明らかにするために、窒素雰囲気における熱重量分析を行った結果をFig.4-8に示す。

横軸は温度、縦軸は繊維の残存重量%である。実験に供した回収繊維は、押出成形時の最高バレル温度（℃）の数値を用いて、KF-E170, KF-E190, KF-E210, KF-E230 と表す。100℃までの重量減少はケナフ繊維に含まれる水分が脱離することによるものである。ケナフ繊維の含水率は約 5%である。150℃以上では重量変化に対する水分の寄与は無視できるため、150℃における値を初期重量として比較検討を行った。

黒線は原料のケナフ繊維を回収繊維と同様に THF 処理した繊維の結果である。赤、緑、紫、青の各線は、170℃から 230℃までバレル温度を変えて押出を行って得られたストランドから回収したケナフ繊維を表している。

押出を行っていない繊維では、温度が 150℃を上回ると重量減少が起こり始め、200℃で約 0.5%の重量減少を起こすことがわかる。一方、押出を行った繊維は、混練温度の上昇に伴って重量変化量が減少している。

ケナフ繊維に含まれる成分のうち、最も熱分解しやすい成分はヘミセルロースであると考えられる。押出工程を経ることにより、ケナフ繊維に含まれるヘミセルロースが押出温度に応じて分解され、

押出後に回収された繊維では、分解生成物が THF 処理中に溶解除去されることにより、その分の熱重量減少が観測されなくなるものと解釈できる。なお、この際に除去されるヘミセルロースは繊維初期重量の 1%以下であるために、IR 測定では検出が困難であり、本章で採用した熱重量分析によって定量的に比較することが可能になった。

Fig.4-8 の挿入図は、150℃から 250℃までの領域を拡大して示したものである。押出温度の上昇に伴って熱重量変化量が減少しており、押出工程におけるヘミセルロースの熱分解の程度が増加した結果と解釈できる。第 2 章では、押出中の最高温度は 190℃に設定していた。この図の緑線に対応する。この場合、190℃では重量減少が 0.1%未満であるのに対し、195℃では約 0.2%に達する。2 章において見出されたバレル温度が 190℃から 195℃に上昇することによって成形品の力学物性が低下するという結果は、このような熱劣化に関連するものと考えられる。

4-3-2 押出回数による繊維の熱損傷

押出工程におけるヘミセルロースの熱分解は、押出温度の上昇ばかりではなく、押出回数の増加によっても進行の程度が増加すると考えられる。Fig.4-9 は異なるバレル設定温度において、繰り返し押出を行った際の押出回数ごとの熱重量減少率を比較して示している。回収繊維は、押出回数の数値を用いて、E1, E2, E3, E4 と表す。なお、熱重量減少率は 250℃における値である。これより、押

出を 4 回行った回収繊維の熱重量減少は、押出温度に関わらず約 1.0%で一定することがわかる。ケナフ繊維に含まれるヘミセルロースのうちで、250℃以下で容易に熱分解される部分は 6%程度であり、その分解生成物うち約 2%は揮発可能な低分子量物質、残りの約 4 %は THF に可溶なオリゴマー成分であると推測される。押出温度を 250℃に設定した場合には、一度の押出工程によってその殆どが熱分解されるものと思われる。

4-3-3 成形過程における繊維の寸法変化

Fig.4-10～Fig.4-12 は、原料繊維(KF)、押出段階の繊維(KF-E)、射出段階（射出成形機のノズルから吐出した段階）の繊維(KF-I)および成形段階（金型内に注入された段階）の繊維(KF-M)の繊維長 (l)、繊維幅 (d)、アスペクト比 (l/d) の分布を比較した結果である。成形前の KF は繊維長の範囲が 0.2～4 mm、繊維幅の範囲が主に 0.5～2 mm である。ケナフ靱皮の繊維細胞の長さは 1.03～6.25mm、平均 2.72mm、同じく幅は 8～18.4 μ m、平均 12.5 μ m と報告されている[122]。したがって KF は、切断された繊維細胞がバンドル状に集合しているものと思われる。KF の分布と比較すると、KF-E の分布は短繊維方向にシフトし、KF-I ではさらに短繊維側にシフトしている。KF-I から KF-M への変化は明瞭には認められない。KF-I の繊維長分布の範囲は 0.1～2 mm であり、0.4 mm が最頻値になっている。繊維長 0.1 mm の繊維の割合は、KF-I では KF-E の約 2 倍となる。また、射出前(KF-R と KF-E)と射出後(KF-I と KF-M)の繊維

維分布を比較すると，射出後では分布幅が狭くなり，単分散に近づくことがわかる．

Fig. 4-11 に示した繊維幅の変化は，繊維長の変化と同様に工程を経るごとに値が減少する傾向を示している．しかし，KF-I，KF-Mにおいても幅の最頻値は約 $70\mu\text{m}$ であり，依然として繊維細胞はバンドル状態を保っているものと思われる．つまり Fig.4-1 に示された階層構造およびルーメンを有する繊維細胞の構造は保持されており，このような植物繊維に特有な構造に起因する特性は，射出成形した植物繊維／高分子複合材料においても発現することが期待される．一方，繊維長，繊維幅がともに減少する結果，Fig. 4-12 に示したアスペクト比 (l/d) は，分布形状が成形工程によらずほぼ一定している．原料繊維 (KF) のアスペクト比の最頻値が 8 であるのに対して，押出，射出，成形後で最頻値が 6 になる程度である．

4-3-4 回転速度が繊維の寸法変化に及ぼす影響

次に，射出段階におけるスクリー回転速度が繊維寸法の分布に及ぼす影響を検討した．回転速度は，30，100，170 rpm の 3 段階に変化させた．結果を Fig.4-13 から Fig.4-15 に示す．

Fig.4-13 に示す繊維長分布は，回転速度が 30 rpm から 100 rpm に増加することにより，最頻値が 0.6mm から 0.4 mm に減少している．しかし，分布曲線の形状には大きな変化は認められない．

一方，繊維幅の分布曲線は大きく変化する(Fig.4-14)．スクリー回転速度が速くなることにより，繊維幅は最頻値が 30rpm における

0.1 mm から 100 rpm では 0.05 mm になり, 170 rpm では 0.06 mm になっている. 回転速度の増加に従って, 繊維幅の変化メカニズムは単純な解繊から徐々にせん断の割合が増加するものと思われる.

以上のような繊維長と線幅の変化が起こる結果, アスペクト比の最頻値は, 30 rpm および 100 rpm における 6 から 170 rpm における 8 に増加する(Fig.4-15). 回転速度を速く設定することによりアスペクト比が大きくなり, 強化繊維としての性能が向上することが期待できる. 第 2 章におけるせん断力の複雑な影響は, このようなアスペクト比の変化に基づくものと思われる.

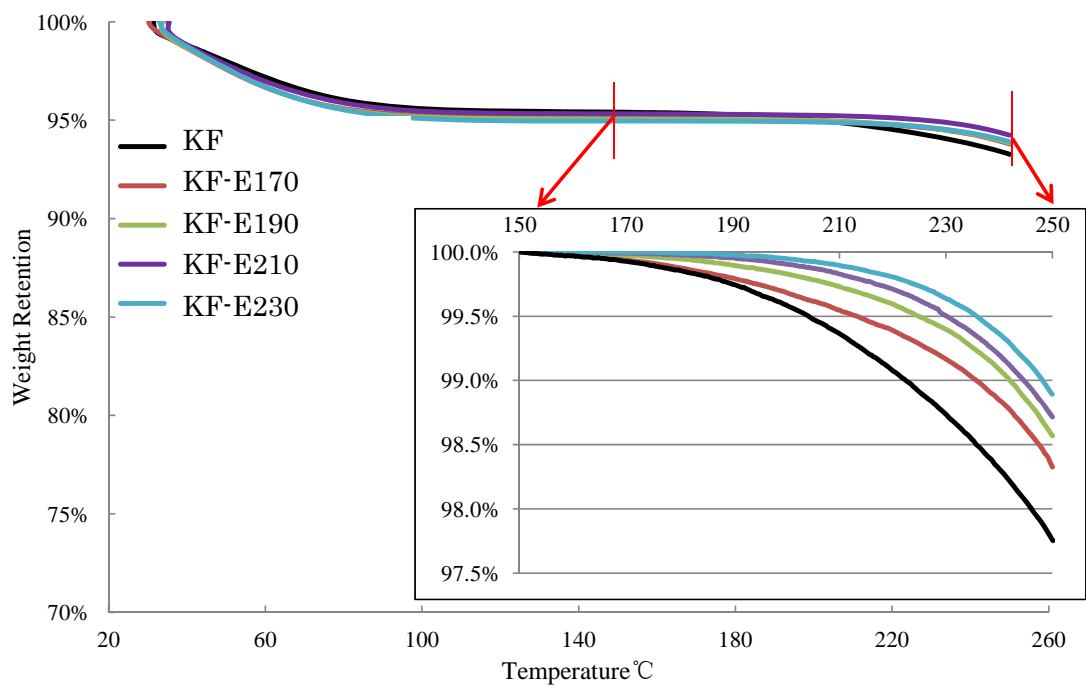


Fig.4-8 回収繊維の熱重量損失に及ぼす押出温度の影響

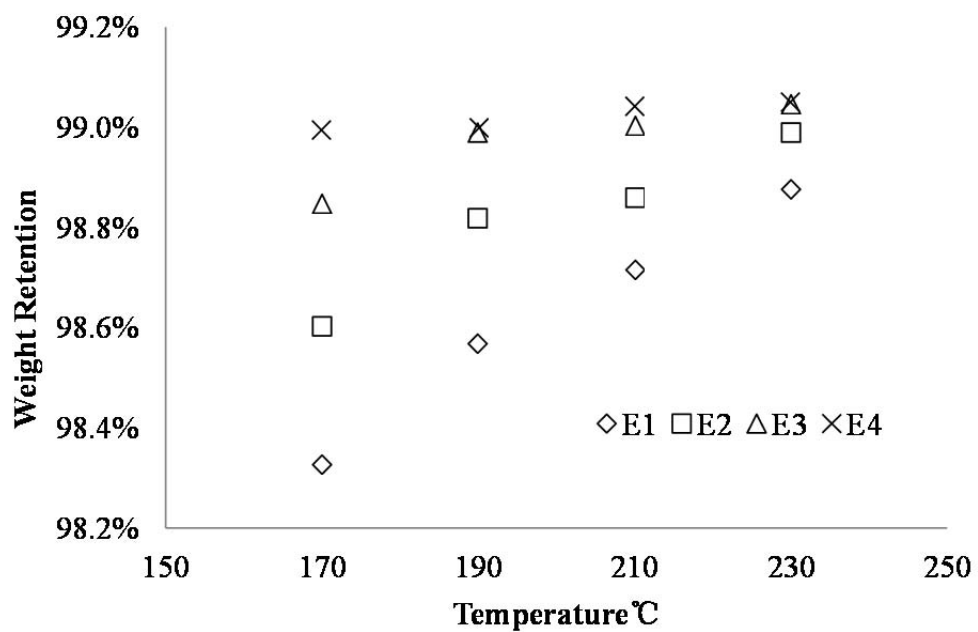


Fig.4-9 回収繊維の熱重量損失に及ぼす押出温度および押出回数
の影響

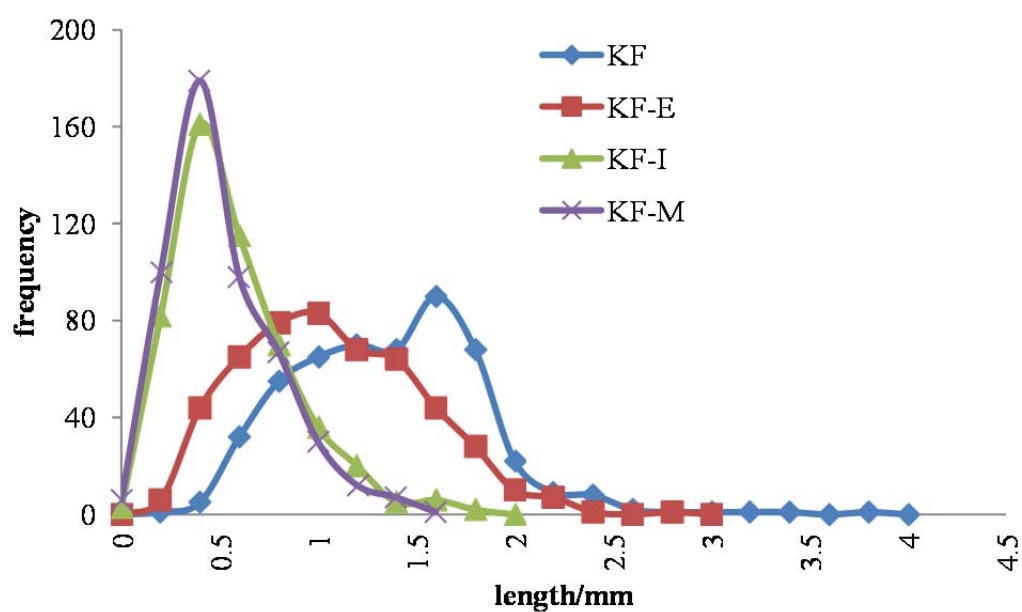


Fig.4-10 成形過程中における繊維長分布の変化

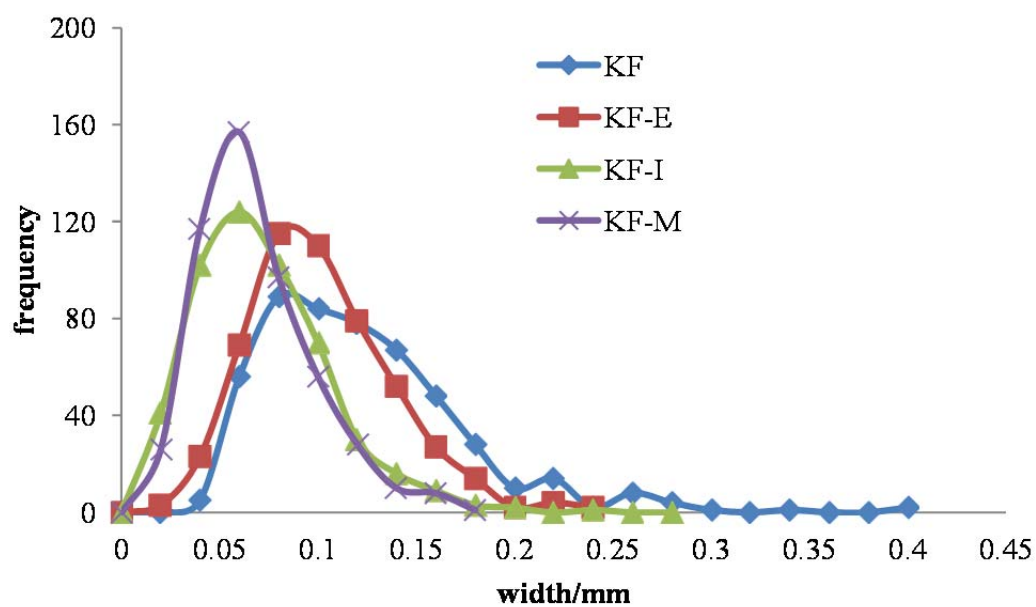


Fig.4-11 成形過程における繊維幅分布の変化

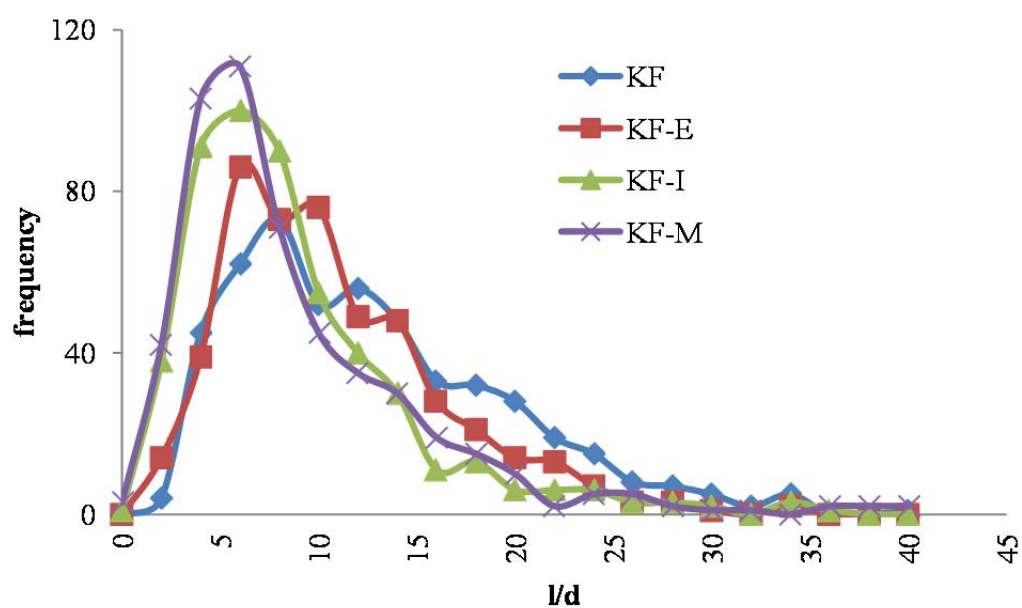


Fig.4-12 成形過程における繊維長/幅比分布の変化

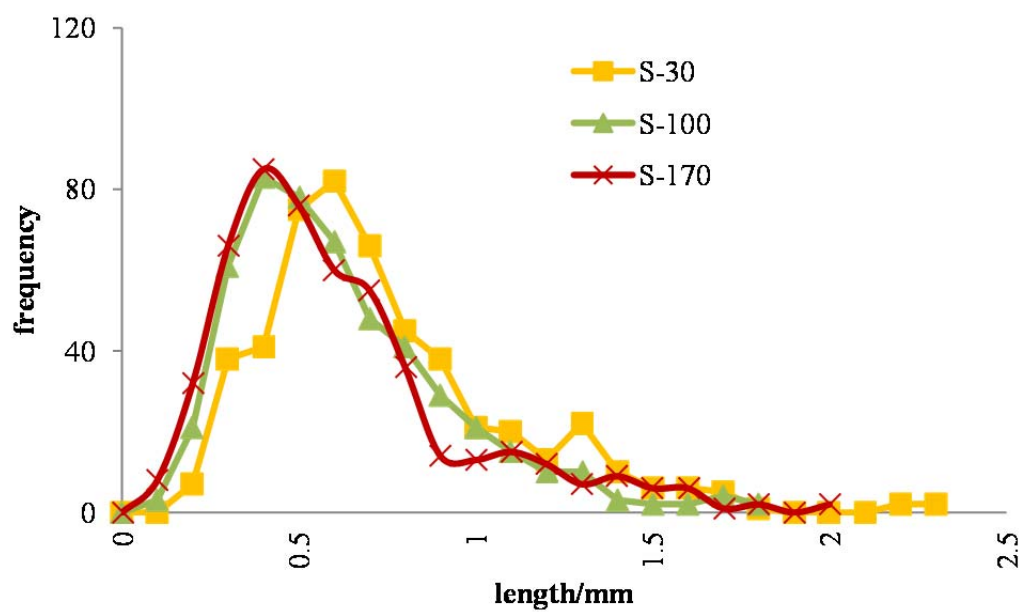


Fig.4-13 繊維長分布に及ぼす射出回転速度の影響

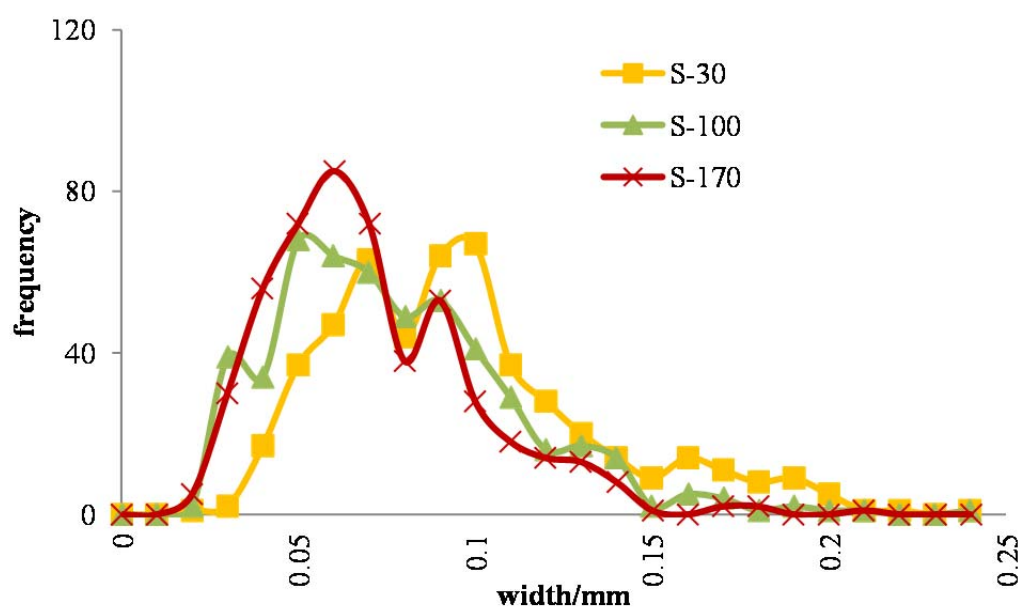


Fig.4-14 繊維幅分布に及ぼす射出回転速度の影響

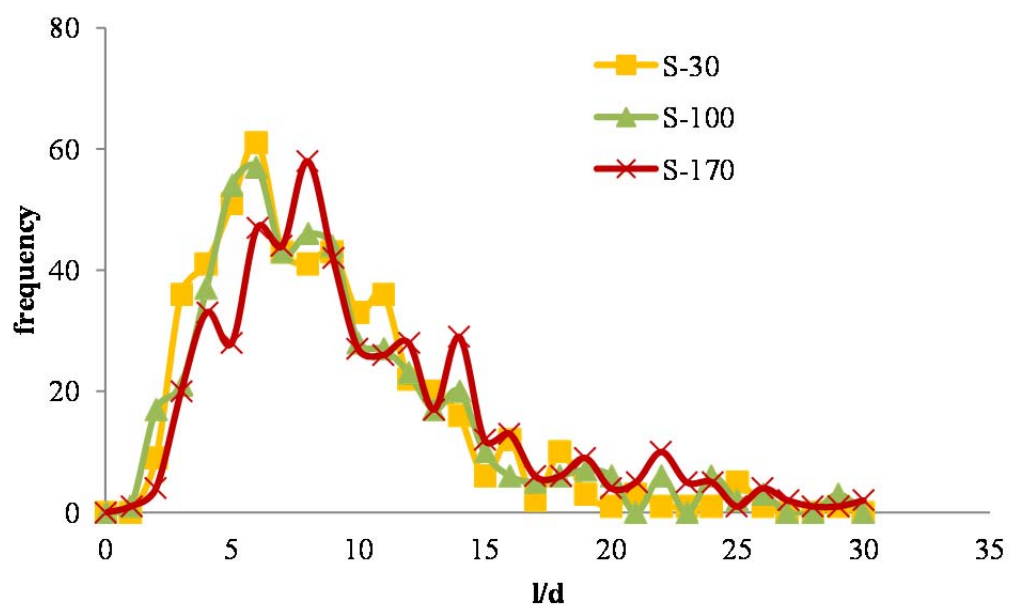


Fig.4-15 繊維長/幅比分布に及ぼす射出回転速度の影響

4-4 まとめ

ケナフ繊維に含まれる成分のうち、最も熱分解しやすい成分はヘミセルロースであると考えられる。押出工程を経ることにより、ケナフ繊維に含まれるヘミセルロースが押出温度に応じて分解され、押出後に回収された繊維では、分解生成物が THF 処理中に溶解除去されることにより、その分の熱重量減少が観測されなくなる。190℃では重量減少が 0.1%未満であるのに対し、195℃では約 0.2%に達する。押出工程のバレル温度が 190℃から 195℃に上昇することによって成形品の力学物性が低下するという結果は、このような熱劣化に関連するものと考えられる。押出工程におけるヘミセルロースの熱分解は、押出温度の上昇ばかりではなく、押出回数の増加によっても進行の程度が増加する。押出を 4 回行うことにより、押出温度に関わらず累積された熱的損傷の程度はほぼ一定となり、250℃で 1 回押出した場合とほぼ等しくなることが明らかになった。

一方、押出、射出、金型内への注入という成形段階を経るごとに、ケナフの繊維は、長さ、幅ともに減少することが明らかになった。特に、射出段階での寸法変化が著しいが、繊維幅は約 $70\ \mu\text{m}$ であり、依然として繊維細胞は幅 $8\sim 20\ \mu\text{m}$ の繊維細胞がバンドル状態を保っているものと思われる。従って、植物繊維に特有な構造に起因する特性は、射出成形した植物繊維／高分子複合材料においても発現することが期待される。

さらに、射出段階におけるスクリー回転速度が繊維寸法の分布

に及ぼす影響に関しては、回転速度の増加に従って、単純な解繊から徐々にせん断の割合を増やしながら繊維幅が減少することが分かった。この結果、アスペクト比は、30 rpm および 100 rpm における 6 から 170 rpm における 8 に増加し、回転速度を速くすることにより強化繊維としての性能が向上することが期待できる。

参考文献

- [99] Y.Q. Yang, T. Ota, T. Morii, H. Hamada: Mechanical property and hydrothermal aging of injection molded jute/polypropylene composites, *Journal of Materials Science*, **46**, 2678-2684 (2011)
- [100] G. Bogoeva-Gaceva, M. Avella, M. Malinconico, A. Buzarovska, A. Grozdanov, G. Gentile, M.E. Errico: Natural fiber eco-composites, *Polymer Composites*, **28**, 98-107 (2007)
- [101] M. Zampaloni, F. Pourboghrat, S.A. Yankovich, B.N. Rodgers, J. Moore, L.T. Drzal, A.K. Mohanty, M. Misra: Kenaf natural fiber reinforced polypropylene composites: A discussion on manufacturing problems and solutions, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **38**, 1569-1580 (2007)
- [102] P. Wambua, J. Ivens, I. Verpoest: Natural fibres: can they replace glass in fiber reinforced plastics? *Composites Science and Technology*, **63**, 1259-1264 (2003)
- [103] H.M. Akil, M.F. Omar, A.A. Mazuki, S. Safiee, A. M. Ishak, A.A. Bakar: Kenaf fiber reinforced composites: A review, *Materials & Design*, **32**, 4107-4121 (2011)
- [104] R. Malkapuram, V. Kumar, Y. S. Negi: Recent development in natural fiber reinforced polypropylene composites, *Journal of Reinforced Plastics*, **28**, 1169-1189 (2009)
- [105] I.M.D. Rosa, S. Carlo, F. Sarasini: Mechanical and thermal

- characterization of epoxy composites reinforced with random and quasi-unidirectional untreated Phormium tenax leaf fibers, *Materials & Design*, **31**, 2397-2405, (2010)
- [106] H.S. Kim, H-S. Yang, H.J. Kim, H.J. Park: Thermogravimetric analysis of rice husk flour filled thermoplastic polymer composites, *Journal of Thermal Analysis and Calorimetry*, **76**, 395-404 (2004)
- [107] H.P.S.A. Khalil, N.L. Suraya: Anhydride modification of cultivated kenaf bast fibers: Morphological, spectroscopic and thermal studies, *BioResources*, **6(2)**, 1122-1135 (2011)
- [108] K. Oksman, P. Mathew, R. Langstrom, B. Nystrom, K. Joseph: The influence of fiber microstructure on fiber breakage and mechanical properties of natural fiber reinforced polypropylene, *Composites Science and Technology*, **69**, 1847-1853 (2009)
- [109] A.K. Mohanty, A. Wibowo, M. Misra, L.T. Drzal: Effect of process engineering on the performance of natural fiber reinforced cellulose acetate biocomposites, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **35**, 363-370 (2004)
- [110] W. Liu, T.D. Lawrence, A.K. Mohanty, M. Misra: Influence of processing methods and fiber length on physical properties of kenaf fiber reinforced soy based biocomposites, *Composites Part B: Engineering*, **38**, 352-359 (2007)

- [111] H. Bouafif, A. Koubaa, P. Perre, A. Cloutier: Effects of fiber characteristics on the physical and mechanical properties of wood plastic composites, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **40**, 1975-1981 (2009)
- [112] P.V. Joseph, K. Joseph, S. Thomas: Effect of processing variables on the mechanical properties of sisal-fiber-reinforced polypropylene composites, *Composites Science and Technology*, **59**, 1625-1640 (1999)
- [113] U. Yilmazer, M. Cansever: Effects of Processing Conditions on the Fiber Length Distribution and Mechanical Properties of Glass Fiber Reinforced Nylon-6, *Polymer Composites*, **23**, 61-71 (2002)
- [114] H. Peltola, B. Madsen, R. Joffe, K. Nattinen: Experimental Study of Fiber Length and Orientation in Injection Molded Natural Fiber/Starch Acetate Composites, *Advances in Materials Science and Engineering* (2011)
- [115] A. Terenzi, J.M. Kenny, S.E. Barbosa: Natural fiber suspensions in thermoplastic polymers. I. Analysis of fiber damage during processing, *Journal of Applied Polymer Science*, **103**, 2501-2506 (2007)
- [116] I. Funda, V. Julien, G. Nessim, L.P. Jean, D. Audrey, V. Rudy, V.Bruno: Correlation between processing conditions and fiber breakage during compound of glass fiber-reinforced polyamide,

- Polymer Composite*, **32**, 1842 (2011)
- [117] S. Migneault, A. Koubaa, F. Erchiqui, A. Chaal., K. Englund, M.P.Wolcott: Effects of processing method and fiber size on the structure and properties of wood–plastic composites, *Composites Part A: Applied Science and Manufacturing*, **40**, 80-85 (2009)
- [118] Q. Lin, G.S. Yan, and C.W. Yu: the Analysis of the Influence of Fiber Length Distribution on the Theoretical and Additional Unevenness of Yarn, *Fibers and Polymers*, **11(2)**, 266-270 (2010)
- [119] R.D.Chien, S.C. Chen, P.H. Lee, J.S. Huang: Study on the Molding Characteristics and Mechanical Properties of Injection-molded Foaming Polypropylene Parts, *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, **23**, 429-444 (2004)
- [120] B. Nyström, R. Joffe, R. Långström: Microstructure and Strength of Injection Molded Natural Fiber Composites, *Journal of Reinforced Plastics and Composites*, **26**, 579-599 (2007)
- [121] Y.A. Shekeil, S.M. Sapuan, K. Abdan, E.S. Zainudin: Influence of fiber content on mechanical and thermal properties of kenaf fiber reinforced thermoplastic polyurethane composites, *Material and Design*, **40**, 299-303 (2012)
- [122] T.A. Calamari, W. Tao, W.R. Goynes: A preliminary study of kenaf fiber bundles and their composite cells, *Tappi Journal*, **80**, 149-154 (1997)

第五章 結論

材料は人間の生活と生産活動にとって不可欠なものであり、人類の進化に伴い発展してきた。一般に、材料は金属、ポリマー、複合材料、ガラスの四種類に分けられている。1960年代から、複合材料の重要性が増えてきた。繊維強化複合材料として、ガラス繊維強化複合材料と炭素繊維強化複合材料が広く使われてきたが、近年になって、環境への関心の高まりとともに、天然繊維強化複合材料が注目されるようになってきている。しかし、天然繊維強化複合材料と合成繊維強化複合材料は製造条件の設定指針は異なると考えられる。したがって、天然繊維強化複合材料を開発するためには、その加工特性を解析することが非常に重要であると考えられる。

本研究では、ケナフ靱皮繊維とポリスチレンからなる天然繊維強化複合材料の加工特性を材料科学的観点に立って検討した。

ケナフ繊維は高弾性率であり、ポリスチレンに添加すると、複合材料の力学性能を向上させることができる。しかし、複合材料の成形性および機械的特性の安定性に悪影響を与える。第二章では、ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料の押出成形および射出成形に関して、実験計画法（DOE）に基づく統計分析により成形条件の特徴を抽出した。さらに、射出成形条件が繊維含有量 10%と 20%の複合材料の力学性能に影響を与える原因を分析した。注目した射出成形条件はバレル温度、金型温度、射出速度、射出圧力、背圧、回転速度、射出時間と冷却時間である。バレル温度と射出圧力は複合材料

の力学性能に影響を与える主要な条件であることが確認された。バレル温度設定は製造過程でケナフ繊維/ポリスチレン複合材料の熔融指数に影響する。製造温度によっては、植物繊維は熱劣化現象が起こすことがある。したがって、低いバレル温度はケナフ繊維の熱損傷を減少させる。射出圧力はケナフ繊維/ポリスチレン複合材料の成形のための重要な条件である。繊維を充填すると複合材料の熔融指数は低下するために、より高い射出圧力が必要である。

第三章では、繊維含有量が増加するとともに、ダンベル状成形品の異なる箇所での繊維方向が変化することを見出した。一般的に、繊維（特にサンプルの中央部での繊維）の流れ方向は射出方向と一致するが、繊維含有率が 40%または 50%の場合は、サンプルの末端での繊維方向は射出方向と垂直するような傾向が認められた。引張破断はサンプルの中央部ではなく、サンプルの末端部で起こることが見出された。射出方向に垂直な繊維が破断点になると考えられる。

合成繊維と違い、高分子複合材料の製造過程でケナフ繊維は損傷する可能性が高い。第四章では、実際の製造条件に近いバレル温度とスクリー回転数に基いて、押出温度と押出回数によるケナフ繊維の熱分解ならびに、射出回転速度と製造段階によるケナフ繊維の寸法変化を詳細に検討した。押出温度と押出回数が増加すると、回収した繊維の熱分解の程度は減少した。これはケナフ繊維/ポリスチレン複合材料からリサイクルした繊維が再利用できることを示

している。一方、ケナフ繊維の長さとは幅は三段階（押出、射出、成形）の過程で減少した。製造段階と射出回転速度によって、L/D 比がどのように変化するかが明らかになった。

本研究で得られた知見は、ケナフ繊維／ポリスチレン複合材料の製造条件に対して有用な指針となった。

関連論文:

1. X.H. Tuo, T.H. Kawai, S.I. Kuroda: Optimal Injection-Molding Conditions for Mechanical Properties of Kenaf Fiber Composite Materials by Taguchi Method, *Advanced Science Letters*, **19**, 478-482 (2013)
2. 拖 曉航, 尹 盛煥, 河井 貴彦, 黒田 真一: ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料の成形過程における繊維の損傷, マテリアルライフ学会誌, 掲載許可

付録A ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料の射出成形性に及ぼす発泡剤の添加効果

本論文の第2章で示したように、ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料はケナフ繊維含有量の増加に伴って、熔融粘度が著しく増大し、射出成形が困難になる。製品の設計が複雑であれば、そりと充填不足の現象が頻繁に発生することになる。ここでは、ケナフ繊維/ポリスチレン複合材料の成形性を改善するために、発泡剤を成形助剤として使用する方法を試みる。

発泡剤は一般に成形体中に気泡を導入する発泡成形のために用いられるが、化学発泡剤(以下BA)のうち、熱分解に伴ってCO₂ガスを発生するものを用いれば、射出成形時に樹脂に加えられる高い圧力によって超臨界状態になって樹脂中に溶解し、樹脂の熔融粘度を低下させる可能性があると考えた。

BAには、三協化成株式会社製の化学発泡剤マスタバッチ(MB6074)を使用した。ポリスチレン等の押出、射出成形に適しており、成形時のヒケ・そりを防止し、寸法精度を向上するなどの性能がある。発生ガス量は50ml/gである。

使用したケナフ靱皮繊維は、中国河南省産のケナフ全茎をレッティング処理した後、水蒸気加熱洗浄の方法でケナフ繊維の異臭を低減し、ペレット化したものを用いた。ペレットをほぐした後にケナフ繊維を篩(11×11 mesh)で篩い分け、80℃で12時間乾燥した。マトリックスに使用したPSはPSJ433である。

使用した原料の組成を Table A-1 に示す．試料名は第 2 章と同様に PS とケナフ繊維の組成に基づく略号に続けて，添加した BA の重量%の値を付している．KF と PS からなる複合材料ペレットを射出成形により調製し，これを所定量の BA とともに射出成形機のホッパーに入れ，複合材料を射出成形した．金型には，第 2 章と同様に，スパイラルフロー長測定用のものと JIS K711-3(1/2)ダンベル製造用の 2 種を用いた．各成形条件を Table A-2, Table A-3 に示す．

ケナフ繊維 50%の場合，BA を 2%添加することにより，スパイラルフロー長は 220mm から 320mm に増加し，明らかに流動性の改善が認められた．ダンベルを成形した結果を Fig. A-1～Fig.A-6 に示す．なお，ダンベルに書いた数字は射出圧力の値(単位%)である．

「'」が付いた数字は発泡剤を添加した場合を表す．なお，最大射出圧力は 210.8MPa である．BA を全体の 2%添加するだけで，成形性が大きく向上することが明らかである．特に KF 含有量 40%と 50%では，BA を添加することによって初めて満足できる射出成形が可能となった．

BAから発生した二酸化炭素は，超臨界状態に匹敵する高温高压の成形条件下でマトリックス樹脂のPSに溶解してPSの分子間力を低減し，流動性を向上させるとともに，冷却固化後にもPS分子鎖の自由体積を大きく保ち，引張破断伸びの増加に寄与すると推定された．

Table A-1 複合材料の組成 (重量比)

	PSJ433	KF	BA
PSBA0	100	0	0
PSBA2	98	0	2
PS/KF10BA	90	10	0
PS/KF10BA2	88.2	9.8	2
PS/KF20BA	80	20	0
PS/KF20BA2	78.4	19.6	2
PS/KF30BA	70	30	0
PS/KF30BA2	68.6	29.4	2
PS/KF40BA	60	40	0
PS/KF40BA2	58.8	39.2	2
PS/KF50BA	50	50	0
PS/KF50BA2	49	49	2

Table A-2 スパイラルフローサンプルの射出成形条件

Injection conditions	Barrel temperature	Rotation speed
	180-185-190-190℃	120rpm
Injection pressure	Injection speed	Back pressure
80MPa	70mm/s	0.65MPa
Mold temperature	Injection time	Cooling time
60℃	6秒	30秒

Table A-3 ダンベル試験片の射出成形条件

	Barrel temperature	Injection pressure	Backing pressure
PS	165-165-165-165℃	42~74MPa	0.2MPa
KF10-30%	170-170-170-170℃	31~74MPa	0.6MPa
KF40-50%	170-175-180-185℃	42~127MPa	0.6MPa

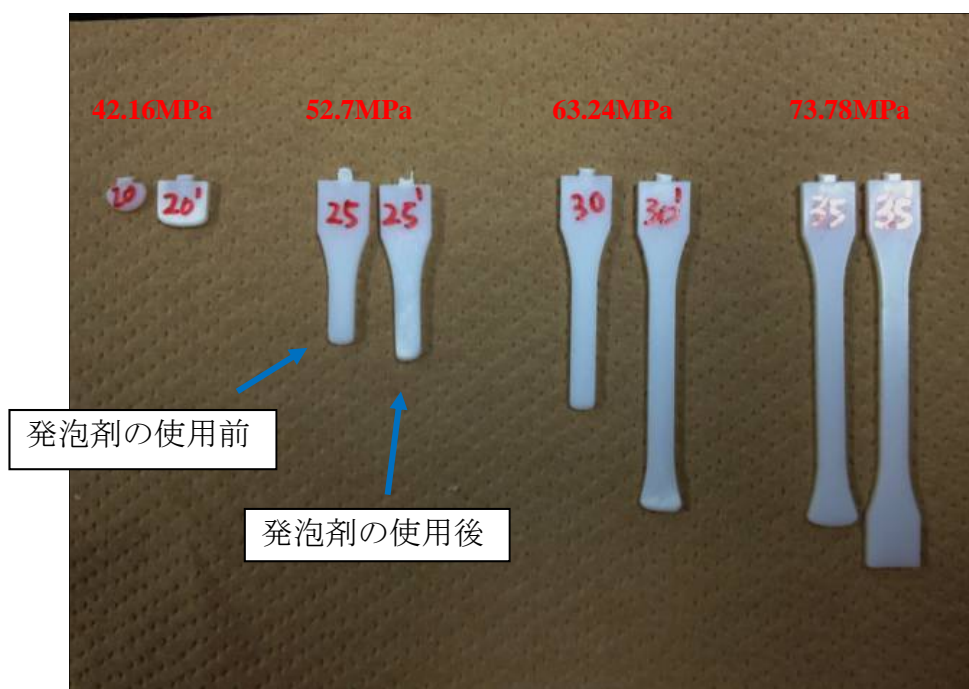


Fig.5-5 PSBA0とPSBA2の成形状況

注: ダンベルに書いた数字は射出圧力の大小(単位%). 数字に「'」が付いているものは発泡剤を添加. 最大射出圧力は 210.8MPa.



Fig.5-6 PS/KF10BA0とPS/KF10BA2の成形状況

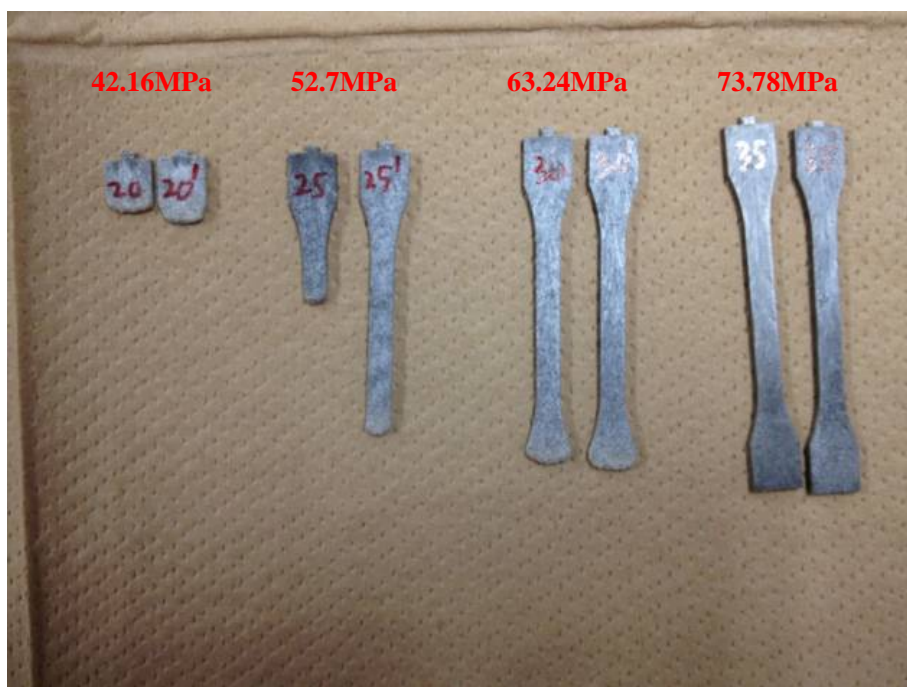


Fig.5-7 P/SKF20BA0とPS/KF20BA2の成形状況



Fig.5-8 PS/KF30BA0とPS/KF30BA2の成形状況

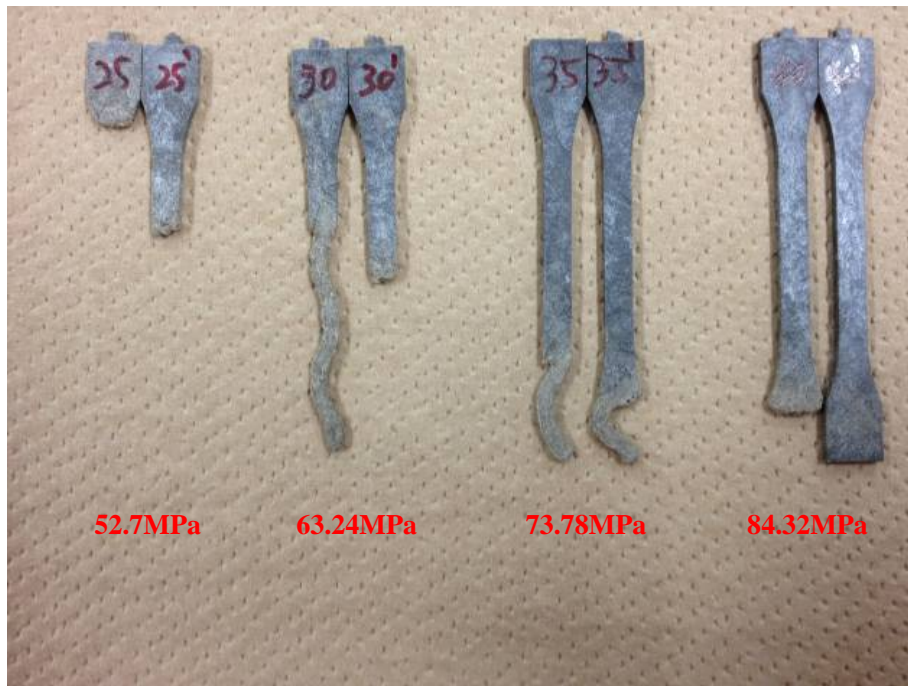


Fig.5-10 PS/KF40BA0とPS/KF40BA2の成形状況

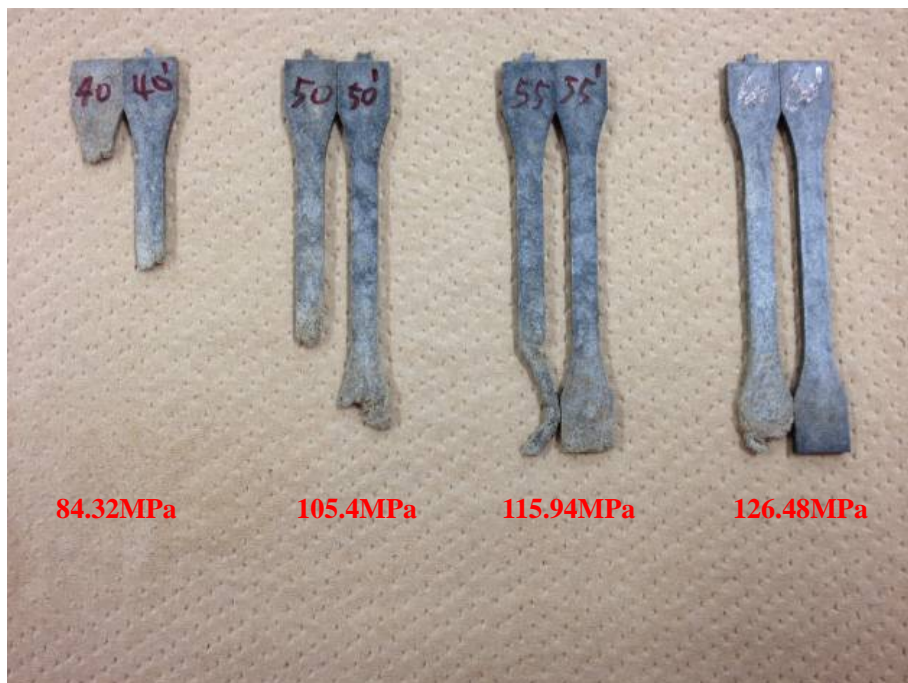


Fig.5-11 PS/KF50BA0とPS/KF50BA2の成形状況

謝辞

本研究を行うにあたり、終始熱心なご指導およびご意見を賜りました黒田真一教授に心より深く御礼申し上げます。さらに、本研究が円滑に行えるようにご協力を頂いた河井貴彦助教、本研究に必要な試薬等のご提供および、ご指導を頂いた東邦工業株式会社に御礼申し上げます。

そして、生産システム工学専攻黒田研究室において共に研究生活を送った皆様に感謝致します。特に、研究に限らず多くの面々でたくさんのご助言、ご協力を頂きました周励民博士、細井克比古博士に御礼申し上げます。

また、本研究の遂行にあたり多くのご助言、ご協力を頂きました群馬大学工学研究科 河原豊教授、久米原宏之名誉教授、渡利久規教授、野田玲治准教授に対して深く感謝致します。